DIE KOMPLEXE SUSZEPTIBILITÄT VON NICKEL IN DER UMGEBUNG DES CURIEPUNKTES

Norbert Herzum

1972

Digitized by the Internet Archive
in 2026

https://archive.org/details/IA41546015_0090

DIE KOMPLEXE SUSZEPTIBILITÄT VON NICKEL IN DER UMGEBUNG DES CURIEPUNKTES

Inaugural-Dissertation

zur Erlangung der Doktorwürde

der

Fakultät für Physik

der

Ludwigs-Maximilians-Universität München

vorgelegt von

Norbert Herzum

aus

Aussig

September 1972

UNIV.
LEIDEN
BIBL.

1. Berichterstatter: Prof. Dr. K. Stierstadt

2. Berichterstatter: Prof. Dr. J. Brandmüller

Tag der mündlichen Prüfung: 15. 12. 1972

Inhaltsübersicht

1. Einleitung

2. Grundlagen für die Messung

2. 1. Die verallgemeinerte Suszeptibilität (MARSHALL u. LOWDE)

2. 2. Wahl der Meßprobe und des Meßverfahrens

2. 2. 1. Die Meßprobe

2. 2. 2. Schaltbild der Meßprobe

2. 3. Meßverfahren

2. 3. 1. Die MAXWELL-Brücke

2. 3. 2. Erweiterung der Meßbereiche

2. 3. 3. Der Lock-In Verstärker

2. 4. Einsatzgrenzen und Genauigkeit

2. 4. 1. Begrenzung durch den Skineffekt

2. 4. 2. Begrenzung durch die Wickelkapazität

3. Messung der Temperaturabhängigkeit der komplexen Suszeptibilität

3. 1. Blockschaltbild der Anlage

3. 2. Der Vakuumofen

3. 3. Stromversorgung und Temperatureinstellung

3. 4. Temperaturmessung an der Probe

4. Genauigkeit und Fehler

4. 1. Fehler bei der Messung mit der MAXWELL-Brücke

4. 2. Fehler beim Lock-In Verfahren

4. 3. Der Fehler der Meßfrequenzen

4. 4. Der Fehler der Temperaturmessung

4. 5. Reproduzierbarkeit und systematische Fehler

4. 6. Prüfung auf RAYLEIGH-Verhalten

5. Probenvorbehandlung

6. Die Temperaturabhängigkeit der komplexen Suszeptibilität

6. 1. Real- und Imaginärteil als Funktion der Temperatur

6. 2. Der kritische Exponent γ der Suszeptibilität

6. 3. Eigene Meßergebnisse

6. 4. Der Temperaturbereich unterhalb Tc

6. 4. 1. Theoretische Ansätze für die Auswertung

6. 4. 2. Meßergebnisse für χ'_f

6. 4. 3. Meßergebnisse für χ''_f

6. 4. 4. Experimentelle Aussagen

7. Die Frequenzabhängigkeit der komplexen Suszeptibilität

7. 1. Experimenteller Befund

7. 2. Der Imaginärteil als Funktion der Frequenz

7. 2. 1. Die Wirbelstromverluste

7. 2. 2. Der Nahwirkungsverlustanteil (χ''_n)

7. 2. 3. Die ε-Abhängigkeit von χ''_n

7. 3. Der Realteil als Funktion der Frequenz

7. 3. 1. Experimentelle Ausgangssituation

7. 3. 2. Theoretischer Ansatz für χ'

7. 3. 3. Die Dispersionsrelationen nach KRAMERS-KRONIG

8. Die Ausdehnung des Frequenzintervalles: Lock-In Messungen

9. Zusammenstellung der Ergebnisse und Vorschläge für weitere Arbeiten

10. Zusammenfassung

11. Quellennachweis

1. Einleitung

Dem Gebiet der Phasenübergänge und den dabei auftretenden "kritischen Phänomenen" wurde in den letzten Jahren sowohl von theoretischer wie auch von experimenteller Seite große Aufmerksamkeit gewidmet. Die Forschung konzentriert sich dabei auf die Phasenübergänge zweiter Ordnung und das Verhalten des jeweiligen Systems in der Umgebung des Umwandlungs- oder kritischen-Punktes. Das Fehlen latenter Wärmen bei diesen Umwandlungen und das Auftreten thermodynamischer Gleichgewichtsvorgänge erleichtern eine sowohl theoretische wie auch experimentelle Erforschung dieses Gebietes. Beispiele für solche Umwandlungspunkte sind etwa die kritische Temperatur des Flüssigkeit - Gas - Überganges und der Curie- bzw. Néel-Punkt beim Ferro- bzw. Antiferro-Magneten. Am Umwandlungspunkt (Tc) oder kritischen Punkt verschwinden die Unterschiede zwischen geordneter und ungeordneter Phase. In dem Übergangsgebiet zwischen geordneter und ungeordneter Phase treten in gewissen thermodynamischen Variablen große Fluktuationen auf, deren Reichweite und Lebensdauer am kritischen Punkt gegen unendlich gehen. Die Temperaturabhängigkeit solcher thermodynamischer Größen und Transportkoeffizienten zeigt daher bei Tc Singularitäten. Um experimentelle Informationen über diese Singularitäten zu erhalten, kennt man im Falle des magnetischen Festkörpers im Wesentlichen zwei Methoden: Einmal Neutronenstreuexperimente, wobei die Durchstrahlung der Probe mit Neutronen eine Abbildung der Fluktuationen der Magnetisierung liefert, und

zum anderen Messungen der Suszeptibilität, die ein Maß für diese Fluktuationen darstellt. Messungen der Suszeptibilität in schwachen Wechselfeldern nahe Tc können Aufschluß über das zeitliche Verhalten der Fluktuationen geben. Sehr störend kann sich dabei im ferromagnetischen Leiter der Wirbelstromeinfluß bemerkbar machen. Die klassische Wirbelstromtheorie erlaubt es im Prinzip, die Wirbelstromdämpfung durch Rechnung zu erfassen. Wird bei einer Temperatur T sehr nahe Tc die Abklingzeit der Fluktuationen vergleichbar mit der Zeitkonstante der Wirbelströme, so sollte man Abweichungen der Meßergebnisse vom klassischen Wirbelstromverhalten erwarten. Diesen Effekt zu untersuchen war das ursprüngliche Ziel meiner Arbeit. Inzwischen haben MINKIEWICZ (1) und Mitarbeiter aus Neutronenstreudaten die Spindiffusionskonstante (oberhalb Tc) und die Steifigkeitskonstante der Spinwellen (unterhalb Tc) an Nickel bestimmt. Daraus folgen Abklingzeiten von der Größenordnung 10^{-12} sec, für eine Temperaturabweichung Tc-T von etwa 6 Grad sowohl oberhalb als auch unterhalb des Punktes Tc. Dieser Fequenzbereich ist mit Induktionsmethoden nicht mehr zugänglich. Trotzdem habe ich mich entschlossen, Suszeptibilitätsmessungen im kHz-Bereich durchzuführen, da sie zwei Vorteile bieten. Erstens kann mit sehr kleiner Feldamplitude gearbeitet, also der Grenzfall äußeres Feld $H \rightarrow 0$ in guter Näherung realisiert werden. Zweitens können Dämpfungs- und Relaxations-prozesse mit großen Zeitkonstanten (Größenordnung 10^{-5} bis 10^{-2} sec) beobachtet werden, wie es gerade mit Neutronenstreuexperimenten nicht möglich ist.

2. Grundlagen für die Messung

2. 1. Die verallgemeinerte Suszeptibilität (MARSHALL u. LOWDE (2))

Man betrachtet die verallgemeinerte Suszeptibilität als "Response-Funktion", mit der ein System auf eine experimentell definierte Störung antwortet. Durch das Fluktuations-Dissipations-Theorem der statistischen Mechanik wird diese verallgemeinerte Suszeptibilität als Größe definiert, welche die Energie-Dissipation einer eingeprägten Störung mit dem Spektrum der spontanen Fluktuationen - in diesem Fall - der Magnetisierung verbindet. Gegeben sei ein Spin-System: Dann ist die Magnetisierung $\vec{M}$ am Ort r , hervorgerufen durch ein Feld $\vec{H}$ am Ort r' gegeben durch

$$\vec{M}(r) = \sum_{r'} \chi(r - r') \cdot \vec{H}(r'). \qquad ((1))$$

Anwendung der Fourier-Transformation:

$$\vec{M}(\vec{K}) = \sum_{r} \vec{M}(r) \cdot e^{iK \cdot r}, \quad \chi(\vec{K}) = \sum_{r} \chi(r) \cdot e^{iKr}, \quad \vec{H}(\vec{K}) = \sum_{r} \vec{H}(r) \cdot e^{iKr},$$

ergibt $\vec{M}(\vec{K}) = \chi(\vec{K}) \cdot \vec{H}(\vec{K})$. $\qquad ((2))$

Für 2 Raumpunkte $\alpha = (x_1, y_1, z_1)$ und $\beta = (x_2, y_2, z_2)$ kann ((2)) in der Form geschrieben werden:

$$\langle M^{\beta}(\vec{K}) \rangle = \langle M^{\beta}(\vec{K}) \rangle_{H=0} + H^{\alpha}(\vec{K}) \cdot \chi^{\alpha\beta}(\vec{K}),$$

mit $\langle\ \rangle$ als thermodynamischer Mittelwert.

Läßt sich die Zeitabhängigkeit einer eingeprägten Störung $H^{\alpha}(\vec{K},t)$ in der Form $H^{\alpha}(\vec{K},t) = H^{\alpha}(\vec{K}) \cdot e^{i\omega t}$ darstellen, so stellt die Größe $\chi^{\alpha\beta}(\vec{K},\omega)$ die "Response-Funktion dar, mit der das Spin-System auf die eingeprägte Störung $H^{\alpha}(\vec{K},t)$ antwortet.

Dann gilt nach (2) für die Magnetisierung:

$$\langle M^{\beta}(\vec{K},t)\rangle = \langle M^{\beta}(\vec{K},t)\rangle_{H=0} + \left\{e^{i\omega t}\cdot H^{\alpha}(\vec{K})\right\}\cdot\chi^{\alpha\beta}(\vec{K},\omega). \quad ((3))$$

Gleichung ((3)) stellt somit eine exaktere Schreibweise des bekannten Ausdrucks $\chi = \frac{\Delta M}{H}$ dar.

Schon seit der Arbeit von H. JORDAN (3) ist bekannt, daß im Ferromagnetikum Energieverluste auftreten, die von der eingeprägten Störung $H(\vec{K},\omega)$ gedeckt werden. Man hat daher die Suszeptibilität komplex anzusetzen, also:

$$\chi(\vec{K},\omega) = \chi'(\vec{K},\omega) - i\chi''(\vec{K},\omega) \quad ((4))$$

Wie aus der Theorie der inelastischen Neutronenstreuung folgt (V. HOVE (4)), ist der differentielle Wirkungsquerschnitt pro Raumwinkel- und Energie-intervall direkt dem Imaginärteil χ'' proportional,

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega\cdot dE_i} \propto \chi''(\vec{K},\omega), \quad ((5))$$

während eine direkte Messung des Realteiles mittels Neutronenstreuung nicht möglich ist. Obwohl es im Prinzip möglich ist, den Realteil mit Hilfe der Kramers-Kronig-Relationen aus dem Imaginärteil zu bestimmen, erscheint eine direkte Messung von χ' und χ'' wünschenswert.

2. 2. Wahl der Meßprobe und des Meßverfahrens

Neben Neutronenstreuexperimenten ist es vor allem die Messung der Induktion in schwachen Wechselfeldern, aus der sich die Suszeptibilität bestimmen läßt. Als Maß für die Suszeptibilität verwendet man entweder die Selbstinduktivität einer Spule mit ferromagnetischem Kern oder die Gegeninduktivität eines Zweispulensystems.

2. 2. 1. Die Meßprobe

Um den Einfluß von Streufeldern vernachlässigen zu können, wurde als Probengeometrie die Toroidform gewählt.

Abbildung 1 zeigt den Aufbau der Probe

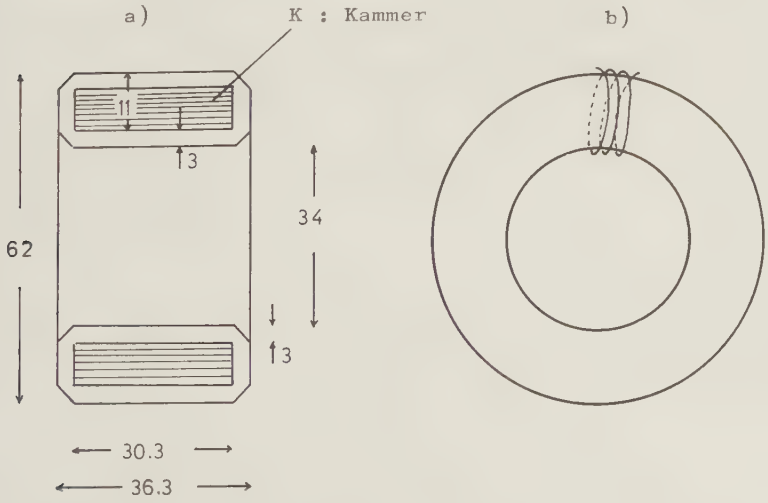


Abb. 1 Querschnitt a) und Längsschnitt b) der Probe, Maße in mm.

Der Toroidkörper wurde aus Stenan gedreht, das anschließend vom Hersteller hartgebrannt wurde. Die Kammer K enthielt einen ferromagnetischen Kern aus Nickel-S der Vacuumschmelze Hanau *). Das Ferromagnetikum lag in Form einer Folie von 30 mm Breite und 50 μ Dicke vor. Die Nickelfolie wurde zusammen mit einer gleich dicken Glasseidenfolie spiralig in die Kammer gewickelt, analog einem Hochfrequenzbandkern. Die Glasseidenisolationsschicht zwischen je zwei Nickel-Schichten war zur Vermeidung des Skineffektes unerläßlich.

2. 2. 2. Schaltbild der Meßprobe

Die Bestimmung der komplexen Suszeptibilität bzw. Permeabilität des Nickel-S-Kerns kann auf eine Messung der Selbstinduktivität und des Wechselstromverlustwiderstandes des Toroids zurückgeführt werden. Das Ersatzschaltbild zeigt

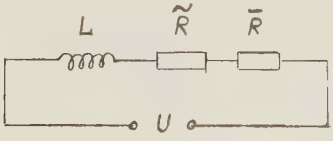


Abb. 2

Abbildung 2.

L: Selbstinduktivität

$\tilde{R}$: Wechselstromverlustwiderstand des Kerns

$\bar{R}$: Gleichstromwiderstand der Wicklung

Legt man an die Toroidspule mit ferromagnetischem Kern eine Wechselspannung, U, so folgt für die induzierte Spannung U_{int}:

$$U_{int} = -n \cdot \frac{d\phi}{dt}$$

(n: Windungszahl der Toroidspule).

*) Die chemische Analyse des Herstellers ergab eine Reinheit von 99.95%. Verunreinigungen: Mn 0.01, Si 0.01, Mg<0.01, Fe 0.02, Cu 0.01, C<0.02 in %.

Unter der Voraussetzung, daß die Feldverteilung im Toroidkern homogen ist, gilt für den magnetischen Fluß ϕ :

$$\phi = -\frac{1}{n}\left\{\int \vec{B}_0 \cdot d\vec{f} + \int \vec{B}\cdot d\vec{f}\right\} = -\frac{1}{n}\left\{B_0(F_2 - F_1) + BF_1\right\}$$

F_2 : Gesamtquerschnitt des Toroids

F_1 : Querschnitt des ferromagnetischen Volumens im Toroid

und $\vec{B}_0 = \mu_0 \vec{H}$ die Leerinduktion ohne Ferromagnetikum,

und $\vec{B} = \bar{\mu}\mu_0 \vec{H}$ die Induktion mit Ferromagnetikum.

μ_0: Permeabilität des Vacuums

$\bar{\mu}$: Relative komplexe Permeabilität des Ferromagnetikums

Weiter sei sinus-förmige Zeitabhängigkeit des Magnetfeldes vorausgesetzt: $H = \tilde{H}\cdot e^{i\omega t}$

Der Strom in Toroid ist dann $I = \frac{l}{n} H$, wenn l der mittlere Umfang des Toroids ist.

Der komplexe Widerstand des Toroids ist gegeben durch:

$$Z = \frac{n\dot{\phi}}{I} + \bar{R} = \frac{-n[\mu_0(-i\omega)H(F_2 - F_1) + \mu_0\bar{\mu}(-i\omega)HF_1]}{(l/n)H} + \bar{R}$$

Es ist $\frac{n^2}{l}\mu_0 F = L_0$ die Leerinduktivität ohne Ferromagnetikum.

Andererseits ist der Wechselstromwiderstand Z gemäß Schaltbild Abb. 2 gegeben zu $Z = \bar{R} + \tilde{R} + i\omega L$.

Es folgt: $\bar{R} + \tilde{R} + i\omega L = \frac{n^2}{l}\mu_0 i\omega[(F_2 - F_1) + F_1\bar{\mu}] + \bar{R}$

$$\tilde{R} + i\omega L = \frac{n^2}{l}\mu_0 F_2 i\omega[1 - F_1/F_2 + (F_1/F_2)\bar{\mu}]$$

$$= L_0 i\omega[1 + (F_1/F_2)(\bar{\mu} - 1)]$$

Ferner gilt: $\bar{\mu} = \bar{\chi} + 1$

und für die Maßsysteme: $\bar{\chi}_{MKSA} = 4\pi\,\bar{\chi}_{CGS}$

Es folgt: $\tilde{R} + i\omega L = i\omega L_0[1 + (F_1/F_2)(\chi' - i\chi'')]$, und die Trennung von Real- und Imaginärteil ergibt:

$$\chi' = \frac{F_2}{F_1}\left(\frac{L}{L_0} - 1\right), \quad \chi'' = \frac{F_2}{F_1} \cdot \frac{\tilde{R}}{\omega L_0}$$

bzw. für das C - G - S - System, das im Folgenden verwendet wird,

$$\chi' = \frac{F_2}{4\pi F_1}\left(\frac{L}{L_0} - 1\right), \quad \chi'' = \frac{F_2}{4\pi F_1} \cdot \frac{\tilde{R}}{\omega L_0} \cdot \quad ((6))$$

Man kann die Gleichungen ((6)) auch durch eine Fourier-Analyse für H(t) und B(t) ableiten, wie OLANDER (5) gezeigt hat.

Um die Leerinduktivität meßtechnisch erfassen zu können, wurde ein Toroid aus Stenan gleicher Geometrie und Windungszahl hergestellt.

2. 3. Meßverfahren

Als Meßsysteme standen eine Wechselstrombrücke nach MAXWELL und ein "Lock-In"-Verstärker zur Verfügung.

2. 3. 1. Die Maxwellbrücke

Ausgangspunkt für die folgenden Betrachtungen ist ein gegenüber 2. 2. 2. verfeinertes Ersatzschaltbild der Meßprobe:

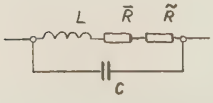


Abb. 3

L = Induktivität

$\bar{R}$ = Gleichstromwiderstand der Wicklung

$\tilde{R}$ = Wechselstromverlustwiderstand

C = Wickelkapazität

Die Wickelkapazität läßt sich für $\omega < \omega_0 = 1/\sqrt{L \cdot C}$ durch eine Frequenzabhängigkeit von L, $\bar{R}$ und eine zusätzliche von $\tilde{R}$ ausdrücken. Es entsteht das neue Ersatzschaltbild für die Probe:

Abb. 4

mit:

$$L' = \frac{L(1-\omega^2 LC) - R \cdot C}{\omega^2 R^2 C^2 + (1-\omega^2 LC)}, \quad R' = \frac{R}{\omega^2 R^2 C^2 + (1-\omega^2 LC)}, \quad R' = \bar{R}' + \tilde{R}'$$

Man erhält diese Beziehungen durch Anschreiben der komplexen Widerstände Z (nach Abb. 3) Z' (nach Abb. 4) und durch die Bedingung $Z = Z'$.

Die Meßgrößen L' und R' werden in einer Maxwellbrücke gemessen, die von SCHIEMENZ während seiner Diplomarbeit gebaut (6) und von mir erweitert und verbessert wurde.

Mit dem transformierten Ersatzschaltbild für die Meßprobe hat die Brücke folgende Gestalt:

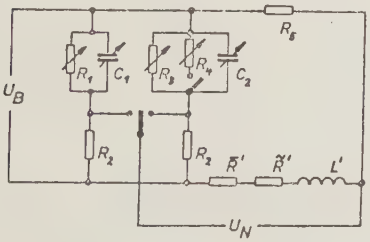


Abb. 5

Es bedeuten: R_4, C_2 die Widerstands- bzw. Kapazitätsabgleichdekaden, U_B die Brückenspannung, U_N die Spannung am Nullinstrument.

Der Zweig R_1, C_1 ist ein Wagnerscher Hilfszweig zur Kompensation der stets vorhandenen Erdkapazitäten.
$R_3 = \infty$ (für Wechselstrommessungen, $\neq \infty$ für Gleichstrommessungen).

Die Abgleichbedingungen lauten:

$$L' = R_2 \cdot R_5 \cdot C_2, \quad \tilde{R}' = \frac{R_2 \cdot R_5}{R_4} - \bar{R}' \qquad ((7))$$

(Bezüglich der genauen Rechnung verweise ich auf SCHIEMENZ (6)).

2. 3. 2. Erweiterung der Meßbrücke

Vorliegende Meßbrücke war ursprünglich für folgende Bereiche konzipiert: $5 \cdot 10^{-3} \leq L' \leq 10^{-2}$ [H]

$10^{-2} \leq \tilde{R}' \leq 10^{2}$ [Ω]

Da sich die Permeabilität von weichem Nickel am Curiepunkt um den Faktor 10^3 ändert, mußten die Meßbereiche erheblich erweitert werden. Neben den sehr kleinen Eigenverlusten - der Abgleich der Blindkomponente eines Wechselstromwiderstandes Z erfolgt durch Präzisionskondensatoren - zeichnet sich eine Maxwellbrücke durch leichte Transformierbarkeit des Meßbereiches aus. Aus den Abgleichbedingungen ((7)) folgt, daß eine geeignete Variation des Widerstandes R_5 die

Meßbereiche zu größeren oder kleineren L' und $\tilde{R}'$ Werten verschiebt. Mit Hilfe von geeichten Präzisionswiderständen konnte R_5 über einen Bereich von 3 Zehnerpotenzen variiert werden. Ferner wurde unter Verwendung von Feintrieben und präziser Eichung die Genauigkeit der Abgleichdekaden R_4, C_2 um eine weitere Stelle erhöht.

Die Meßbereiche waren nun:

$$2 \cdot 10^{-5} \leq L' \leq 5 \cdot 10^{-1} \quad [H]$$

$$10^{-4} \leq \tilde{R}' \leq 10^{3} \quad [\Omega]$$

Zur Probe wurden in der erweiterten Brücke Induktivitätseichnormale ausgemessen. Zum Beispiel ergab sich für ein Eichnormal von L = 1 mH, $\overline{R}$ = 0.8Ωeine Maximalabweichung von: L = 1 mH $\pm$ 0.3%, R = 0.8Ω$\pm$ 1%, bei einer Meßfrequenz von 1 kHz.

Da die vorliegende Meßbrücke nur für das Frequenzintervall $0.6 \leq f \leq 6.0$ kHz konzipiert war, wurde zur Erweiterung des Frequenzgebietes ein "Lock-In"-Verstärker benutzt.

2. 3. 3. Der Lock-In-Verstärker

Der "Lock-In"-Verstärker, das Modell 121 der Firma Princeton Applied Research, besitzt folgende Eigenschaften:

Abb. 6

Eingangskanäle: U_{Sig}, U_{Ref}

Ausgangskanal: U_{out}

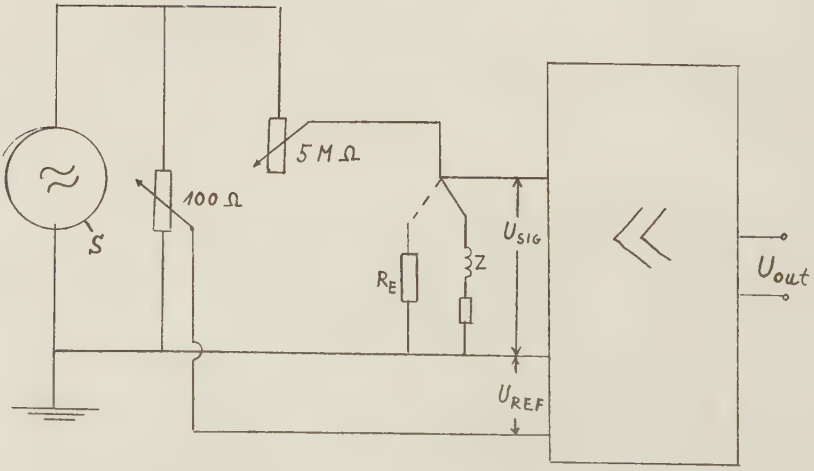
1) Der Phasenwinkel zwischen den Eingangsspannungen U_{SIG} und U_{REF} ist direkt meßbar, oder zwischen 0^0 und 360^0 verschiebbar.

2) Der Verstärker besitzt eine bestimmte Durchgangsfunktion: $U_{out} = U_{SIG} \cdot \cos\varphi$ (φ: Phasenwinkel zwischen den beiden Eingangsspannungen)

3) Der Verstärker ist im Frequenzintervall $0.003 \leq f \leq 150$ kHz selektiv abstimmbar.

Um unter Benutzung von 1) und 2) die komplexe Suszeptibilität gemäß Gleichung ((6)) messen zu können, wurde folgende Schaltung gewählt. (Abb. 7)

Abb. 7

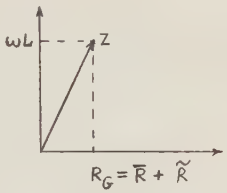


S : Sender

Es bedeuten $Z = \overline{R} + \widetilde{R} + i\omega L$, die Meßprobe

R_E : Widerstandsdekaden.

Der Wechselstromwiderstand Z der Meßprobe läßt sich im Zeigerdiagramm darstellen:



Die Lock-In-Durchgangsfunktion lautet: $U_{out} = U_{SIG} \cdot \cos\varphi = I \cdot R_G$.

Um die Schwierigkeit einer direkten Messung des Stromes I in der Meßprobe zu umgehen, kann die an der Meßprobe Z abfallende Spannung wahlweise durch die rein ohmschen Widerstandsdekaden R_E eingestellt werden. Der Strom ist dann: $I = \frac{U_{SIG}}{R_E}$

Ferner gilt: $R_G = \widetilde{R} + \overline{R} = \frac{U_{out}}{I} = \frac{R_E \cdot U_{out}}{U_{SIG}}$; $K = \frac{F_2}{4\pi \cdot F_1}$,

und $\chi'' = \frac{K(R_G - \overline{R})}{\omega L_0} = \frac{K}{\omega L_0}\left(\frac{R_E \cdot U_{out}}{U_{SIG}} - \overline{R}\right)$, unter Berücksichtigung des Zeigerdiagrammes folgt: $I\omega L = I|Z|\sin\varphi$

$= U_{SIG} \cdot \sin\varphi$

χ' läßt sich folgendermaßen umschreiben

$$\chi' = K\left(\frac{\omega L - \omega L_0}{\omega L_0}\right) = K\left(\frac{U_{SIG} \cdot \sin\varphi}{I\,\omega L_0} - 1\right).$$

Für das Lock-In-Verfahren läßt sich somit die komplexe

Suszeptibilität aus den Meßgrößen U_{out}, U_{SIG}, R_E darstellen

$$\chi' = K\left(\frac{R_E\sqrt{1-(U_{out}/U_{SIG})^2}}{\omega L_o} - 1\right), \quad \chi'' = \frac{K}{\omega L_o}\left(\frac{R_E \cdot U_{out}}{U_{SIG}} - \bar{R}\right) \quad ((7))$$

Der interne Phasenschieber des Lock-In-Verstärkers ermöglicht es, eine durch Erdkapazitäten hervorgerufene Anfangsphase zu kompensieren und spielt bei diesem Verfahren die Rolle des Wagnerschen Hilfszweiges bei der Maxwellbrücke. Da in die Ausdrücke für χ' und χ'' nur das Verhältnis U_{out}/U_{SIG} eingeht, wurde an den Schreiberausgang des Lock-In-Verstärkers ein Digital-Voltmeter angeschlossen, um die Ausgangsspannung genügend genau zu messen. Das eingebaute Zeigerinstrument war zu ungenau.

2. 4. Einsatzgrenzen und Genauigkeit

Die möglichen Meßfrequenzen für die beiden Verfahren waren:

1) Maxwellbrücke $0.6 \leq f \leq 6.0$ kHz

2) Lock-In-Verstärker $0.03 \leq f \leq 150$ kHz

Das relativ große Frequenzintervall beim Lock-In-Verstärker wird sowohl durch den Skineffekt, als auch durch die Wickelkapazität der Probenwicklung nach oben hin stark begrenzt.

2. 4. 1. Begrenzung durch den Skineffekt

Ein quantitativer Zusammenhang der Suszeptibilität mit den Meßgrößen R und L ist nur gegeben, wenn die Feldverteilung in der Probe homogen ist. Zur Abschätzung wird die Formel für die Eindringtiefe benutzt:

$$d = 503\sqrt{\frac{\varrho}{f \cdot \mu_a}}$$

d : Eindringtiefe

ϱ : spez. elektr. Widerstand

$[\Omega \cdot mm^2/m]$

f : Meßfrequenz $[Hz]$

μ_a: Anfangspermeabilität

(Der Faktor $503 \cong 1/\sqrt{2\pi\mu_0}$)

Wählt man die Eindringtiefe von der Größenordnung der Foliendicke, also $50\,\mu$, und setzt ferner voraus, daß sich der spezifische Widerstand in einem Temperaturintervall von $Tc \pm 2^0$ C nicht wesentlich ändert, so lassen sich aus obiger Formel Grenzfrequenzen ermitteln, die nur noch von der Größe der Permeabilität abhängen. Aus früheren eigenen Messungen ist bekannt, daß sich die Anfangspermeabilität von weichem Nickel - S am Curiepunkt etwa um 3 Zehnerpotenzen ändert. Die oberen Schranken für die Meßfrequenzen sind also:

χ'(c-g-s)	μ_a	f [kHz]
80.	1000	20
8.0	100	200
0.8	10	2000

Die Abschätzung zeigt, daß bei Messungen mit der Maxwellbrücke der Skineffekt immer vernachlässigbar ist.

2. 4. 2. Begrenzung durch die Wickelkapazität

In Punkt 2. 3. 1. wurde das verfeinerte Ersatzschaltbild der Meßprobe diskutiert und die Meßgrößen L', R' als Funktionen von L, R, C dargestellt. Um nun die wahre Induktivität L und den wahren Verlustwiderstand $\widetilde{R}$ zu ermitteln, muß die Wickelkapazität in Form eines Korrekturfaktors erfaßt werden. Im Gegensatz zu 2. 3. 1. betrachtet man die Rücktransformation: $L = f(L', \widetilde{R}', C)$ und $\widetilde{R} = g(L', \widetilde{R}', C)$.

Für die beiden Schaltbilder (Abb. 3 u. 4) aus Ziffer 2. 3. 1. gilt:

$$Z = i\omega L' + R' \quad , \quad \frac{1}{Z} = \frac{1}{R + i\omega L} + i\omega C \quad ,$$

daraus folgt: $R + i\omega L = \dfrac{i\omega L'(1+\omega^2 LC) + i\omega R'^2 C + R'}{(1+\omega^2 L'C)^2 + \omega^2 L'^2 C^2}$

Mit der Näherung $\omega^2 R'^2 C^2 \ll (1+\omega^2 L'C) \approx 1 \quad (C^2 \approx 10^{-20} F^2)$ erhält man nach Trennung von Real- und Imaginärteil:

$$L = \frac{L'}{1+\omega^2 L'C} + \frac{R'^2 C}{(1+\omega^2 L'C)^2} \quad , \quad R = \frac{R'}{(1+\omega^2 L'^2 C)}$$

Um die Wickelkapazität experimentell bestimmen zu können, wurden der Meßprobe bekannte Kapazitäten C_1 parallelgeschaltet und bei konstanter Frequenz und Permeabilität, die Induktivität in Abhängigkeit von C_1 in der Maxwellbrücke gemessen. Für $\omega^2 L'(C + C_1) \ll 1$ ergab sich eine streng lineare Zunahme der Induktivität mit der Zusatzkapazität C_1.

Aus dem Anfangswert und der Steigung läßt sich die Wickelkapazität bestimmen.

$$\frac{\partial L}{\partial C} = \frac{\partial L'}{\partial (C + C_1)}\bigg|_{C_1 = 0} = const.$$

$$\frac{\partial L'}{\partial C} = \frac{-\omega^2 L'^2}{(1+\omega^2 L' C)^2} \quad , \quad C = \frac{1}{\omega \sqrt{R'^2 + \frac{\partial L'}{\partial C}}} - \frac{1}{\omega^2 L'}$$

Nach diesem Verfahren wurde bei verschiedenen Frequenzen eine Wickelkapazität von C = 350 [pF] als Mittelwert gefunden und durch Messung der Eigenresonanzfrequenz der Meßprobe für ein festes C_1 verifiziert.

3. Messung der Temperaturabhängigkeit der komplexen Suszeptibilität

Während über die Frequenzabhängigkeit der Suszeptibilität im kHz-Gebiet nahe Tc fast keine Messungen vorliegen, existieren für die Temperaturabhängigkeit theoretische Ergebnisse. Ferner folgte aus statischen- und aus Neutronen-Streu-Messungen, daß sich die Suszeptibilität oberhalb Tc wie $\chi \propto \varepsilon^{-\gamma}$ verhalten muß, mit der reduzierten Temperatur $\varepsilon = |T-Tc|/Tc$.

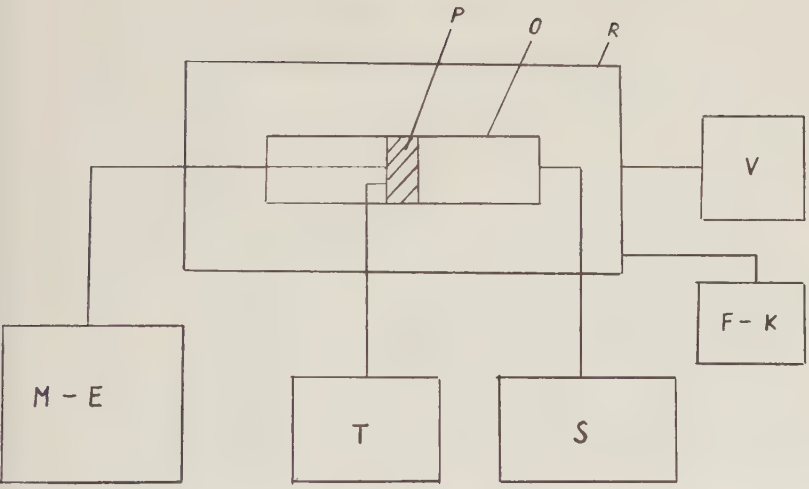
Da der Curiepunkt von Nickel ($Tc \approx 631$ K) relativ hoch liegt, sind an die Wärmeabschirmung hohe Anforderungen zu stellen, um eine ausreichende Temperaturstabilität während der Messung zu gewährleisten.

Um ein ε von etwa 10^{-4} zu erreichen, muß die Temperatur um Tc herum in Schritten von 10^{-2} Grad einstellbar sein. Die Temperaturstabilität während der Messung muß dann mindestens 10^{-3} Grad betragen. Während bisher immer nur die Temperaturabhängigkeit, entweder der statischen Suszeptibilität $\chi_a = \chi'(\omega = 0)$, oder des Imaginärteils der komplexen Suszeptibilität gemessen wurde, können nunmehr Real- und Imaginärteil gleichzeitig gemessen und auf ihre, nach der Theorie geforderte, Temperatur- bzw. Frequenz-Abhängigkeit untersucht werden.

3. 1. Blockschaltbild der Anlage

Abb. 8 zeigt schematisch den Gesamtaufbau der Anlage.

Abb. 8



Es bedeuten: P : Meßprobe

O : Ofen

V : Pumpen und Vakuummeßgerät

M - E : Meßelektronik (Maxwellbrücke bzw. Lock-In-Verstärker wahlweise)

T : Temperaturmessung (Anzeige und Schreiber)

S : Ofen - Stromversorgung

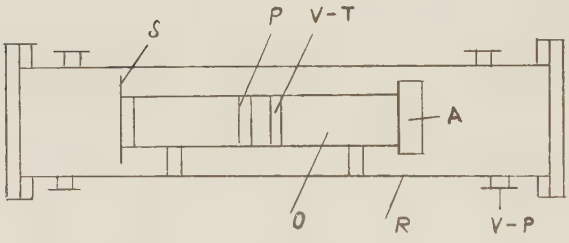
R : Rezipient

F - K : Feldkompensation

3. 2. Der Vakuumofen

Meßprobe und Vergleichstoroid befanden sich in einem Vakuumofen bei 10^{-4} Torr, um Temperaturschwankungen durch Konvektion zu vermeiden. Abb. 9 zeigt den Aufbau.

Abb. 9



Es bedeuten: P : Meßprobe

V - T : Vergleichstoroid

O : Zylinderofen mit Heizwicklungen

A : Anschlußplatte als Reflexionsschild wirkend

S : Reflexionsschild

R : Rezipient

V - P : Vacuumpumpen

Ofen O und Rezipient R bestanden aus ausgesuchten unmagnetischen Stahlrohren. Als Heizelemente wurden 2-adrige Thermocoax-Heizleiter verwendet, die im Ofenzylinder in spiralige Nuten eingestemmt waren. Vorversuche hatten gezeigt,

daß dieser Heizleiter-Typ kein nachweisbares Eigen-Magnetfeld $\lesssim 10^{-4}$ Oe aufbaut. Durch die Reflexionsschilde A und S aus poliertem Edelstahl an beiden Seiten des Zylinderofens konnte die zeitliche Temperaturstabilität wesentlich verbessert werden. Der Rezipient wurde außen mit Asbest und Glaswolle gegen Wärmeverluste an die Umgebung abgeschirmt. Er befand sich außerdem in einer Spulenanordnung zur statischen Kompensation des Erdmagnetfeldes. Mit der Förstersonde wurde am Ort der Probe ein maximal verbleibendes Störfeld von $0.5 \cdot 10^{-3}$ Oe gemessen. Alle Messungen wurden bei einer Wechselfeldamplitude von $\tilde{H} \approx 5 \cdot 10^{-3}$ Oe durchgeführt, d. h. der nicht kompensierbare Anteil des Erdfeldes betrug ca. 10% davon.

3. 3. Stromversorgung und Temperatureinstellung

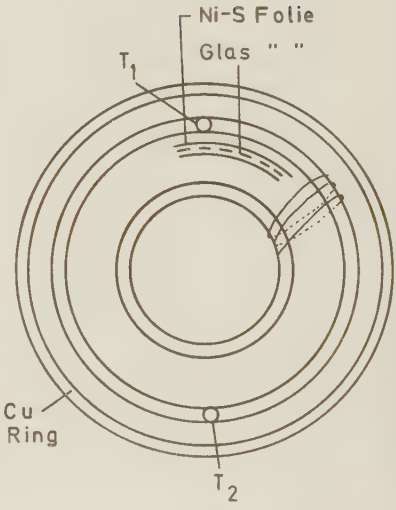
Wegen der großen Wärmekapazität des Ofens und der guten Abschirmung konnten keine schnellen elektronischen Temperaturregler verwendet werden. Dies führte stets zum thermischen Überschwingen des Systems. Zur Heizstromversorgung wurde deshalb ein hochstabilisiertes Netzgerät der Firma Heinzinger verwendet *). Der Nachteil der langen Einstellzeit von ca. 12^h pro Temperaturpunkt wurde durch eine gute Stabilität der Probentemperatur während der Messung ausgeglichen.

*) Heizstrom ca. 2.5 [A] , Einstellgenauigkeit ca. $2.5 \cdot 10^{-4}$ [A] .

3. 4. Temperaturmessung an der Probe

Um einen guten Wärmekontakt mit dem Ofen und möglichst konstante Temperatur längs des Umfanges zu erreichen, wurden Meß- und Vergleichstoroid in Kupferringe eingekittet, die an der inneren Ofenwand dicht anlagen.

Abb. 10



Die Temperaturmessung erfolgte durch zwei handelsübliche Platinwiderstandsthermometer T_1 und T_2, die in unmittelbarem Kontakt mit der äußersten Nickel-Schicht standen. Als Temperatur-Meßgerät stand eine modifizierte Wheatstone-Brücke der Firma Knauer zur Verfügung mit einer Skalenanzeige in Schritten von ca. $2 \cdot 10^{-2}$ Grad. An den Schreiberausgang des Temperatur-Meßgerätes wurde ein Hewlett-Packard Schreiber angeschlossen, mit dessen Nachverstärkung noch eine Temperaturänderung von 10^{-3} Grad nachgewiesen werden konnte. Die beiden Temperaturfühler konnten sowohl in Einzelmessung, als auch in Differenzschaltung betrieben werden. Die Differenzschaltung diente dabei zur Überprüfung der Temperaturhomogenität längs des Umfangs der Probe.

4. Genauigkeit und Fehler

4. 1. Fehler bei der Messung mit der Maxwellbrücke

Ausgehend von Gleichung $\chi' = K\left(\frac{L}{L_0} - 1\right)$

ergibt sich der relative Fehler:

$$\frac{\Delta\chi'}{\chi'} = \frac{\Delta L}{L - L_0} + \frac{L}{(L - L_0)L_0}\Delta L_0$$

für $L \gg Lo$ reduziert sich dies auf:

$$\frac{\Delta\chi'}{\chi'} = \frac{\Delta L}{L} + \frac{\Delta L_0}{L_0} .$$

Da sowohl L als auch Lo in den verschiedenen Meßbereichen auf $\pm$ 0.3% (vergl. 2.3.2.) genau bekannt sind, ergibt sich für große L bzw. χ' : $\frac{\Delta\chi'}{\chi'}$ = 0.6%

Wird hingegen $L \simeq Lo$, so steigt der relative Größtfehler an. Wählt man $L = a \cdot L$,also L in Einheiten von L_0, so erhält man:

a	χ'	$\Delta\chi'/\chi'$ [%]
3	1.	0.6
2	0.5	0.9
1.1	0.05	6.3
1.02	0.01	30.

Für den Imaginärteil folgt gemäß Gleichung $\chi'' = K \cdot \frac{R_G - \bar{R}}{\omega L_0}$

$$\frac{\Delta\chi''}{\chi''} = \frac{\Delta R_G}{R_G - \bar{R}} + \frac{\Delta\bar{R}}{R_G - \bar{R}} + \frac{\Delta L_0}{L_0} ,$$

für große Verlustwiderstände also $R_G \gg \bar{R}$ vereinfacht sich obiger Ausdruck zu

$$\frac{\Delta \chi''}{\chi''} = \frac{\Delta R_G}{R_G} + \frac{\Delta \bar{R}}{\bar{R}} + \frac{\Delta L_o}{L_o} \approx 1.5\,\%$$

(vergl. 2. 3. 2.)

Wird der gemessene Gesamtwiderstand R_G vergleichbar mit dem Gleichstromwiderstand $\bar{R}$, so zeigt die folgende Tabelle wieder ein starkes Anwachsen des Fehlers.

R_G	$\Delta \chi''/\chi''$ [%]
$2.0 \cdot \bar{R}$	1.5
$1.5 \cdot$ "	2.
1.1 "	6.

4. 2. Die Fehler beim Lock-In Verfahren

Experimentell hat sich gezeigt, daß bei den folgenden Berechnungen Lo als fehlerfreie Konstante betrachtet werden kann. Aus Gleichung ((7)) folgt für den Fehler

$$\frac{\Delta \chi'}{\chi'} = \frac{R_E\, U_{out}}{Q \cdot (R_E Q - \omega L_o U_{SIG})} \Delta U_{out} +$$

$$+ \left\{ \frac{R_E \cdot U_{SIG}}{Q (R_E Q - \omega L_o U_{SIG}} - \frac{R_E \cdot Q}{U_{SIG} \cdot R_E \cdot Q - \omega L_o U_{SIG}} \right\} \Delta U_{SIG}$$

$$+ \frac{Q}{R_E \cdot Q - \omega L_o U_{SIG}} \Delta R_E, \quad \text{mit } Q = \sqrt{U_{SIG}^2 - U_{out}^2}$$

Wenn $R_E \cdot Q \gg \omega L_o \cdot U_{SIG}$ ist,

reduziert sich obiger Ausdruck auf:

$$\frac{\Delta\chi'}{\chi'} = \frac{U_{out}}{U_{SIG}^2 - U_{out}^2}\Delta U_{out} + \frac{U_{SIG}}{U_{SIG}^2 - U_{out}^2}\Delta U_{SIG} + \\ + \frac{\Delta U_{SIG}}{U_{SIG}} + \frac{\Delta R_E}{R_E}.$$

Diese Näherung war in den meisten experimentellen Situationen gerechtfertigt und liefert $\frac{\Delta\chi'}{\chi'} \approx 3\%$

Unterscheiden sich U_{SIG} und U_{out} aber schon in der 1-ten Stelle hinter dem Komma, wird $\frac{\Delta\chi'}{\chi'} \approx 10\%$

Für den Imaginärteil liefert Gleichung ((7)) den Fehler:

$$\frac{\Delta\chi''}{\chi''} = \frac{R_E}{R_E U_{out} - \bar{R} U_{SIG}}\Delta U_{out} + \frac{R_E U_{out}}{U_{SIG}(R_E U_{out} - \bar{R} U_{SIG})}\Delta U_{SIG} + \\ + \frac{U_{out}}{R_E U_{out} - \bar{R} U_{SIG}}\Delta R_E + \frac{U_{SIG}}{R_E U_{out} - \bar{R} U_{SIG}}\Delta\bar{R}.$$

Gilt nun $R_E \cdot U_{out} \gg \bar{R} \cdot U_{SIG}$, dann folgt in guter Näherung

$$\frac{\Delta\chi''}{\chi''} = \frac{\Delta U_{out}}{U_{out}} + \frac{\Delta U_{SIG}}{U_{SIG}} + \frac{\Delta R_E}{R_E}.$$

Ist diese Bedingung erfüllt, gilt $\frac{\Delta\chi''}{\chi''} \approx 2\%$

Wird hingegen $R_E \cdot U_{out} \simeq \bar{R} \cdot U_{SIG}$, so steigt der Fehler sehr stark an, ganz wie im Fall der Maxwellbrücke.

4. 3. Der Fehler der Meßfrequenzen

Bei der vorangehenden Fehlerbetrachtung wurde die jeweilige Meßfrequenz ω als fehlerfreie Konstante behandelt. Dies war wegen der hohen Güte der verwendeten Oszillatoren möglich. Bei der Messung mit der Maxwellbrücke wurde ein Elastomat der Firma Institut Dr. Förster verwendet, beim Lock-In Verfahren stand ein Präzisionssender der Firma Rhode und Schwarz zur Verfügung. Die Fehlergrenzen waren:

Maxwellbrücke $\omega \pm 0.5\ ^{0}/_{00}$

Lock-In Verfahren $\omega \pm 1\ ^{0}/_{00}$

4. 4. Der Fehler der Temperaturmessung

Der gesamte Fehler einer Temperaturmessung setzt sich aus dem Ablesefehler und den systematischen Fehlern des ganzen Temperaturmeßsystems zusammen.

Aus der Anzeigegenauigkeit des verwendeten Temperaturmeßgerätes ergibt sich ein Ablesefehler von:

$$\Delta T = \pm\ 0.5 \cdot 10^{-2}\ \text{Grad.}$$

Der absolute Fehler setzt sich aus 3 Anteilen zusammen:

1. Die angegebene Toleranz für Platin-Meßfühler gemäß DIN-Norm 43760 beträgt in dem benutzten Temperaturbereich $\pm$ 2.0 Grad.

2. Die Eigenfehler des gesamten Temperaturmeßsystems, hervorgerufen durch Kontaktierungs- Übergangs- und Zuleitungswiderstände, konnten durch Vorversuche auf ca. 0.2 $\Omega \triangleq$ 0.6 Grad ermittelt werden.

3. Der Ablesefehler, der gegen 1. und 2. vernachlässigt werden kann.

Daraus folgt z. B. für eine Temperatur T nahe Tc:

$$T = (632 \pm 3)\ K, \text{ oder } \Delta T/T = 0.5\%.$$

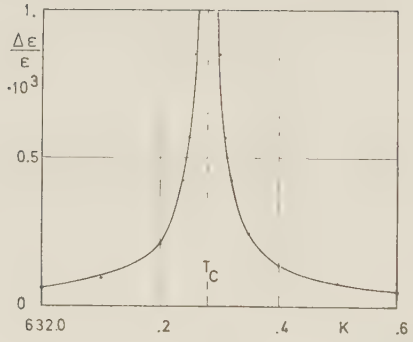
Der Fehler von Temperaturdifferenzen ist allein durch den Ablesefehler bestimmt, da bei der Differenzenbildung die Fehler nach 1. und 2. herausfallen.

Für die normierte Temperatur ε hingegen folgt aus ihrer Definition:

$$\Delta\varepsilon/\varepsilon = |\Delta T/(T-Tc)| + |\Delta Tc/(T-Tc)|\ ,$$

das heißt, der relative Größtfehler von ε ist nicht konstant, sondern eine Funktion von $|(T-Tc)|$. In der nächsten Abbildung 11 ist die Fehlerfunktion ($\Delta\varepsilon/\varepsilon = f(T)$) für die Umgebung des Punktes Tc aufgetragen.

Abb. 11



Für T→Tc, also $\varepsilon \to 0$, geht der relative Größtfehler $(\Delta\varepsilon/\varepsilon)$ der normierten Temperatur (ε) gegen unendlich.

4. 5. Reproduzierbarkeit und systematische Fehler

Alle Messungen wurden im thermischen Gleichgewicht für T=const. bzw. ε = const. durchgeführt.

Zufällig Störungen hervorgerufen etwa durch Schwankungen der Raumtemperatur konnten am Temperatur-schreiber, oder durch zeitliche Änderung des Brückenabgleichs festgestellt werden. Es war deshalb notwendig, die Messungen an einzelnen Temperaturpunkten zu wiederholen. Im Rahmen der Anzeigegenauigkeit (vergl. 3. 4.) des verwendeten Temperaturmeßgerätes war die Reproduzierbarkeit der Temperaturen T_i gegeben.

Ein schwer zu erfassender systematischer Fehler ist die zeitliche und räumliche Temperaturhomogenität in der Meßprobe. Wurde eine zeitliche Änderung der Probentemperatur während der Messung durch den Schreiber oder durch ein allmähliches Abwandern des Brückenabgleichs festgestellt, so wurde die Messung verworfen. Ein möglicher Temperaturgradient in radialer Richtung der Meßprobe war wegen der Anordnung der Nickel-Folie in Form einer Spirale nicht überprüfbar. Für die azimutale Richtung konnten die Temperaturfühler T_1 und T_2 in Differenz geschaltet werden. Die Anzeige war stets größer Null, da T_1 und T_2 nicht exakt den gleichen DIN-Norm Widerstand R = 100.0 Ω (bei 0 Grad Celsius) hatten. Da die angezeigten Temperaturdifferenzen Milli-Ohm Werten entsprachen, wurden Übergangs- und Kontaktwiderstände wesentlich. Nach Abzug dieser Eigenfehler der Temperaturfühler ergab sich ein Temperaturgradient $(T_1 - T_2)$ in azimutaler Richtung, der klein war gegen den Ablesefehler $\Delta T = \pm 0.5 \cdot 10^{-2}$ Grad.

4. 6. Prüfung auf RAYLEIGH-Verhalten

Die Messung mit einer endlichen Wechselfeldamplitude erzeugt einen weiteren systematischen Fehler. In Strenge ist die Anfangssuszeptibilität (χ_a) nur für den Grenzfall verschwindender Feldstärke (H) definiert.

$$\lim_{H \to 0} (M/H) = \text{const.} = \chi_a. \quad (M: \text{Magnetisierung})$$

Für Magnetisierungsänderungen in hinreichend schwachen Feldern, d. h. in Feldern, die klein gegen die Koerzitivfeldstärke sind, gilt das RAYLEIGH-Gesetz:

$$\chi(H) = \chi_a + \nu H, \text{ mit } \nu \text{ als RAYLEIGH-Konstante.}$$

Um RAYLEIGH-Verhalten nachweisen zu können, wurde der Realteil der komplexen Suszeptibilität (χ') als Funktion der Aussteuerungsfeldstärke ($\tilde{H}$) gemessen. Liegt RAYLEIGH-Verhalten vor, so muß χ' linear mit $\tilde{H}$ ansteigen, und die Extrapolation auf $\tilde{H} = 0$ liefert den korrekten Wert für χ_a. Die nächste Abbildung 12 zeigt 2 Beispiele.

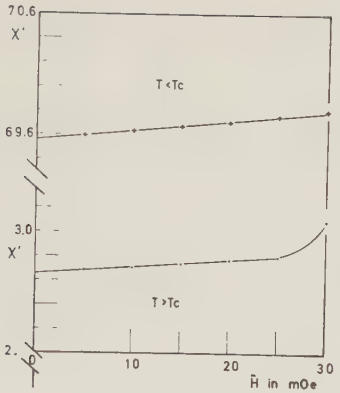


Abb. 12 χ' als Funktion von $\tilde{H}$ für eine konstante Meßfrequenz $\omega/2\pi$ = 6.0 kHz. Gemessen wurde bei konstanten Temperaturen T = 629.36 K (T<Tc) und T = 632.50 K (T>Tc). (Man beachte die Maßstäbe, und die Unterdrückung des Nullpunktes!)

Aus Abb. 12 können die systematischen Fehler $\Delta\chi'_H$ und $\Delta\chi'_H/\chi'_H$ für die beiden Fälle $\chi \gg 1$ (T<Tc) und $\chi' \approx 1$ (T>Tc) ermittelt werden. Alle Messungen wurden bei Feldamplituden $\tilde{H} \leq 5 \cdot$mOe durchgeführt.

Es folgt mit Tc = 632.28 K (vergl. 6. 3.):

$$T = 629.36\ K, \quad Tc-T = 2.92\ K, \quad \varepsilon = 4.62 \cdot 10^{-3}.$$

$$\Delta\chi'_H = \chi'(5\ mOe) - \chi'(0) = 0.04. \quad \Delta\chi'_H/\chi'_H = 0.06\%.$$

$$T = 632.50\ K, \quad T-Tc = 0.32\ K, \quad \varepsilon = 5.1 \cdot 10^{-4}.$$

$$\Delta\chi'_H = 0.02. \quad \Delta\chi'_H/\chi'_H = 0.75\%.$$

Für $\chi' \gg 1$ ist der Fehler $\Delta\chi'_H/\chi'_H$ ca. 10 mal kleiner als der Ablesefehler $\Delta\chi'/\chi'$. (Vergl. 4. 1.) Es gilt in sehr guter Näherung

$$\chi'_H\ (5\ mOe) = \chi'(0) = \chi_a.$$

Wird $\chi' \approx 1$ bleibt der Fehler $\Delta\chi'_H/\chi'_H$ noch in der gleichen Größenordnung ($\leq 1\%$) wie der Ablesefehler $\Delta\chi'/\chi'$, so daß immer noch näherungsweise

$$\Delta\chi'_H\ (5\ mOe) \cong \chi_a \text{ gesetzt werden darf.}$$

Das Erdfeld konnte bis auf einen Rest $\lesssim 0.5$ mOe kompensiert werden. Da gezeigt wurde, daß die ca. 10-mal größere Amplitude des Meßfeldes $(\tilde{H})$ die Messungen praktisch nicht beeinflußte, kann dieser systematische Fehler vernachlässigt werden.

5. Probenvorbehandlung

Um magnetische Meßergebnisse miteinander vergleichen zu können, ist die Kenntnis des Probenzustandes unerläßlich. Vor Beginn der Messungen wurde die Probe ca. 2 - 3 Monate bei Temperaturen zwischen 500 und 600 Grad Celsius getempert. Eine höhere Temperatur war aus technischen Gründen nicht möglich. Nach Abschluß dieses Temper-Prozesses war die gemessene Suszeptibilität während des etwa einjährigen Meßprogrammes voll reproduzierbar. Mit einiger Sicherheit war die Probe vollständig rekristallisiert. Tabelle 1 zeigt einen Vergleich der in dieser Arbeit verwendeten Toroidprobe (Nr. 3) mit den in meiner Diplomarbeit ebenfalls an Nickel-S untersuchten Probenzuständen.

Tabelle 1

Nr.	Recklast kp/mm^2	Hc(25 Grad) Oe	χ_a (25 Grad)	χ_a (HOP-Max)
1	4.67	4.27	6.4	33.1
2	0.0	0.91	22.9	126.0
3	0.0	-	14.0	78.4

Der Zahlenvergleich der χ_a-Werte bei 25 Grad und am HOPKINSON-Maximum zeigt, daß die hier untersuchte Probe 3 sich mehr der Probe 2 annähert, für die völlige Rekristallisation nachgewiesen wurde (7).

Nach Abschluß aller Messungen wurde ein Stück der Probenoberfläche elektrolytisch poliert und mit einem Mikroskop betrachtet. Abbildung 13 zeigt das Ergebnis.

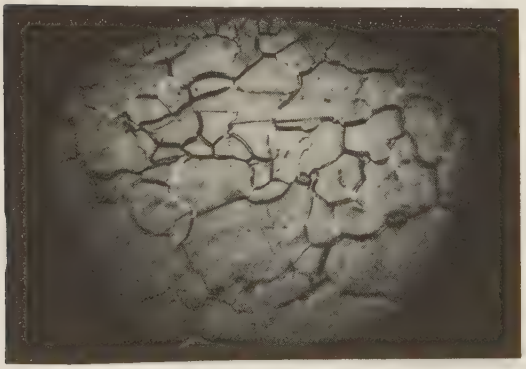


Abb. 13

Die Kristallitte in Abb. 13 haben einen mittleren Durchmesser von 30 - 50 µ. Da Abb. 13 ferner keine Walztextur mehr aufweist, ist die Probe fast vollständig rekristallisiert.

6. Die Temperaturabhängigkeit der komplexen Suszeptibilität

6. 1. Real- und Imaginär-teil als Funktionen der Temperatur

Die Theorien der Phasenübergänge zweiter Ordnung haben sich in der Vergangenheit vor allem mit den anomalen statischen Eigenschaften der Systeme in der Nähe von Tc beschäftigt.

Speziell beim Ferromagneten sind dies: Das Verschwinden der spontanen Magnetisierung M (des Ordnungsparameters) für $T \to Tc$, die bei Tc divergierende Spin-Suszeptibilität χ_s, die ebenfalls divergierende spezifische Wärme C_H sowie die statische räumliche Korrelationsfunktion für die thermischen Fluktuationen von M. Die analytische Form dieses Verhaltens am kritischen Punkt, also die Abhängigkeit etwa des Ordnungsparameters oder der Spin-Suszeptibilität von der normierten Temperatur (ε) zu erklären, ist eines der Hauptziele der Theorie.

Das Verhalten der Spin-Suszeptibilität χ_s als Maß für die Fluktuationen der lokalen Magnetisierung zeigt schematisch Abbeildung 14a. Eine echte Singularität an der Stelle $T = Tc$ ist aber nur für einen idealen, unendlich ausgedehnten, fehlerfreien Einkristall zu erwarten (——), bei einer realen Probe erhält man ein Maximum (----). Für Temperaturen $T \to Tc$ ($T < Tc$) geht der auf Wandverschiebungen und Drehprozessen beruhende ferromagnetische Anteil χ_f der Suszeptibilität gegen 0, wie Abb. 14b zeigt.

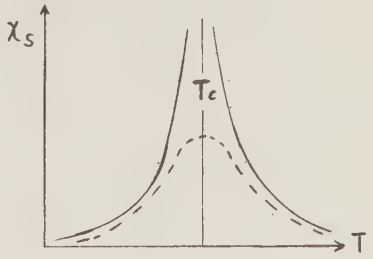


Abb. 14a

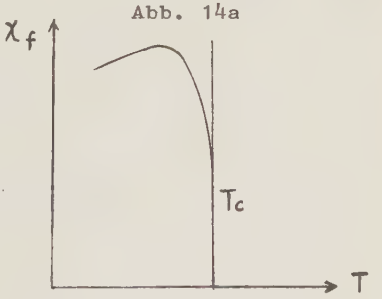


Abb. 14b

Mißt man die Suszeptibilität in dem Übergangsgebiet von der ferromagnetischen zur paramagnetischen Phase, wird man für das Temperaturverhalten der Suszeptibilität die Superposition von Abb. 14a (----) und Abb. 14b erwarten, dargestellt in Abb. 14c.

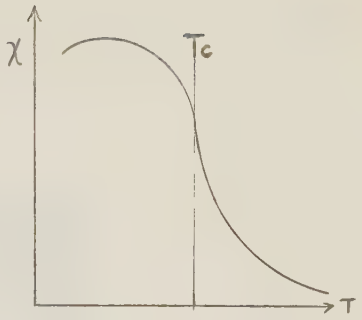


Abb. 14c

Die folgenden Abbildungen (15 - 19) zeigen die Meßergebnisse mit der Maxwellbrücke. Jeder einzelne Meßpunkt wurde bei konstanter Temperatur, also im thermodynamischen Gleichgewicht bestimmt. Abbildung 15 zeigt für Real- und Imaginärteil der Suszeptibilität den Übergang von der ferromagnetischen zur paramagnetischen Phase. Es ergab sich das in Abbildung 14c schematisch gezeigte Verhalten. In Abbildung 15 sind die Ergebnisse für die beiden Frequenzen f = 0.6 kHz (+) und f = 6.0 kHz (.) dargestellt. Die Kurven für die anderen Frequenzen liegen dazwischen.

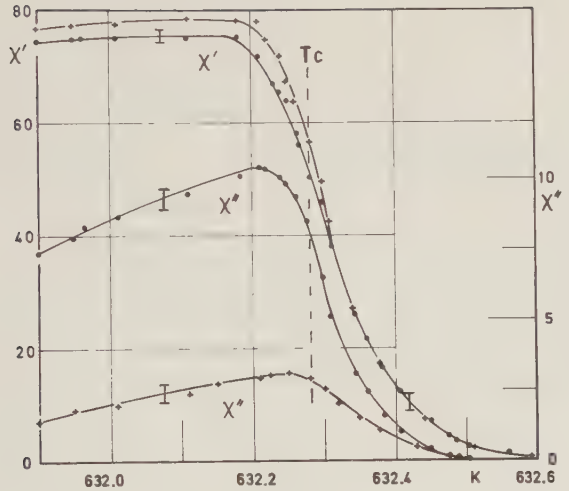


Abb. 15 χ' und χ'' als Funktionen der Temperatur (Maßstäbe verschieden!)

Die Abbildungen 16 - 19 stellen die Erweiterungen der Temperaturskala sowohl in das ferromagnetische wie auch in das paramagnetische Gebiet dar.

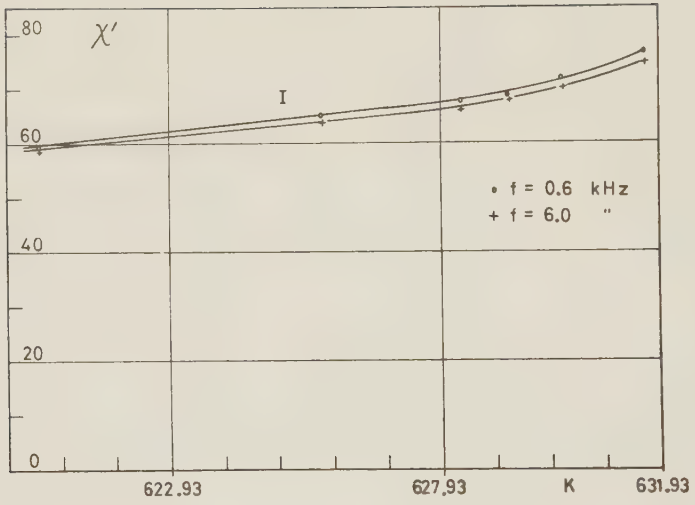


Abb. 16 Für T<Tc, χ' als Funktion von T. Die Kurven für die beiden Frequenzen fallen immer mehr zusammen; bei T = 620 K war χ' praktisch unabhängig von der Meßfrequenz.

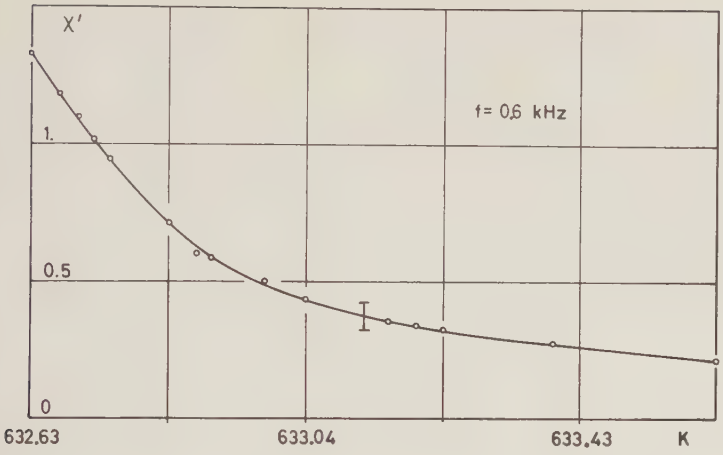


Abb. 17 Die Fortsetzung von Abbildung 15 für T>Tc in das paramagnetische Gebiet. Im Rahmen der Meßgenauigkeit war χ' unabhängig von der Frequenz: $\chi'(0.6\ \text{kHz}) = \chi'(6.0\ \text{kHz})$. Die eingezeichneten Punkte sind repräsentativ für alle Meßfrequenzen.

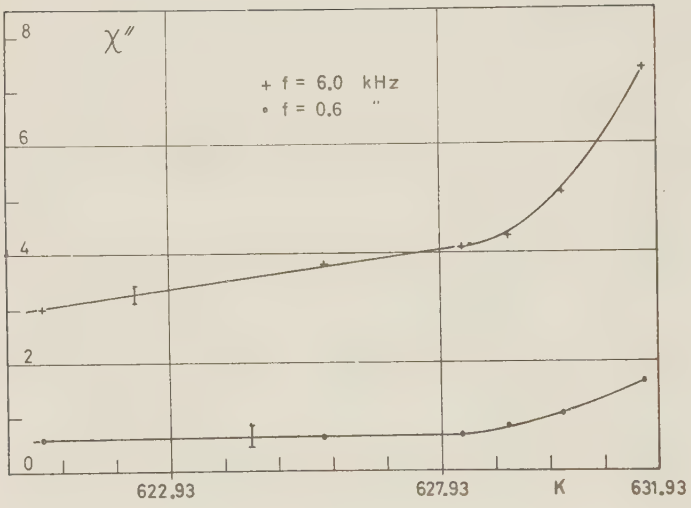


Abb. 18 Für Temperaturen T<Tc, der Imaginärteil χ'' im ferromagnetischen Bereich. Die Ergebnisse für die anderen Frequenzen liegen zwischen den eingezeichneten Kurven.

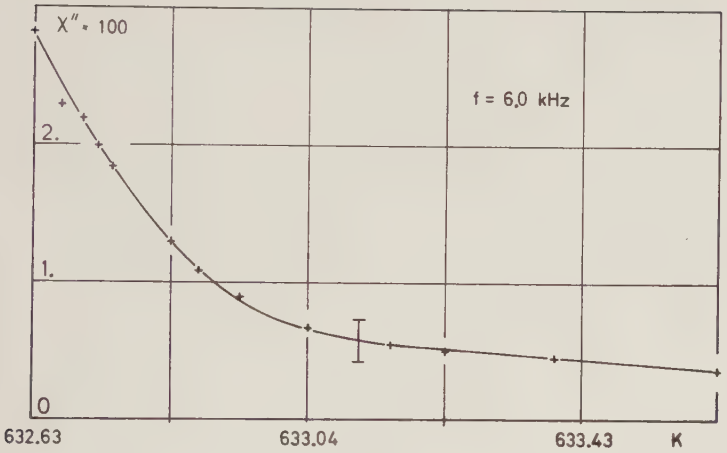


Abb. 19 T>Tc, χ'' im paramagnetischen Bereich. Es sind nur die Werte für f = 6.0 kHz eingezeichnet. Die χ''-Werte für f = 0.6 kHz waren unterhalb der Auflösungsgrenze der Maxwellbrücke. (Auf der Ordinate ist $\chi'' \cdot 100$ aufgetragen)

Real- u n d Imaginärteil der komplexen Suszeptibilität zeigen in der Umgebung des Curiepunktes qualitativ das gleiche Temperaturverhalten. Für alle untersuchten Temperaturen und Frequenzen gilt für das Verhältnis von Imaginärteil zu Realteil: $\chi''/\chi' \lesssim 0.1$.

6. 2. Der kritische Exponent γ der Suszeptibilität

Für $T > T_c$ gehorcht die statische Anfangssuszeptibilität (χ_a) in einem relativen Temperaturintervall von $\varepsilon \simeq 10^{-2}$ dem Potenzgesetz: $\chi_a = \chi_o \cdot \varepsilon^{-\gamma}$

In den letzten Jahren sind zahlreiche Publikationen erschienen, in denen γ sowohl theoretisch wie auch experimentell bestimmt wurde. In Tabelle 2 sind die meist aus Reihenentwicklungen numerisch gewonnenen theoretischen Ergebnisse aufgeführt.

Tabelle 2

Verfasser	Modell, Gittertyp	γ
JOYCE, BOWERS (8)	kl. Heisenberg*)	1.38 ± 0.025
WOOD, RUSHBROOKE (9)	kl. Heisenberg	1.36
H. E. STANLEY (10)	kl. Heisenberg	1.38
	S = ∞ bcc und	1.40
	fcc , sc	
BAKER, GILBERT, EVE	S = 1/2 Heisenberg	1.43 ± 0.01
RUSHBROOKE (11)	für bcc, fcc , sc	
JASNOW, MOORE	Heisenberg	
WORTIS (12)	S = ∞	1.38
	S = 1/2	1.43
STANLEY, KAPLAN (13)	Heisenberg	$\gamma(1/2) = 1.41$
	(S) = 1/2, 1,	$\gamma(1) = 1.38$
	3/2, ∞.	$\gamma(3/2) = 1.36$
		$\gamma(\infty) = 1.33$

*) klassisches Heisenberg-Modell

In Tabelle 3 werden die bisherigen experimentellen Ergebnisse an Nickel dargestellt. Bei allen diesen Messungen wurde die Suszeptibilität magnetometrisch, also in einem endlichen äußeren Feld bestimmt. Man unterscheidet zwei Verfahren:

Magnetometrische Messungen

a) Direkte Bestimmung von $\chi(T) = \frac{\sigma(T)}{Hi}$ mit

$\sigma(T)$ = Magnetisierung / Dichte, und dem inneren Feld Hi definiert durch $H_i = H_a - D \cdot \rho(T) \cdot \sigma(Hi, T)$,

H_a : angelegtes äußeres Feld

D : Entmagnetisierungsfaktor

ρ : Dichte

b) Für T = const. wird σ^2 gegen Hi/σ aufgetragen. Die Extrapolation der Kurven auf die Hi/σ - Achse liefert $1/\chi$.

Tabelle 3

Verfasser	Methode	
KOUVEL, FISCHER (14)	b	1.35 ± 0.02
ARAJS (15)	b	1.3 ± 0.03
GEISSLER (16)	b	1.33 ± 0.06
KOUVELL, RODBELL (17)	b	1.3 ± 0.05
KOUVELL, COMLY (18)	b	1.34 ± 0.01
NOAKES (19)	a	1.31
DRABKIN (20)	a	1.33 ± 0.03
ARAJS, TEHAN (21)	a	1.33 ± 0.01

Neutronenstreuexperimente

Gemäß ((5)) ist der doppelt differentielle Wirkungsquerschnitt für Neutronenstreuung proportional dem Imaginärteil χ'' der verallgemeinerten Suszeptibilität. Bis heute liegen keine Meßergebnisse über die Temperaturabhängigkeit von χ'' im Curiegebiet vor. VAN HOVE (4) nahm an, daß man den doppelt differentiellen Streuquerschnitt in einen räumlichen und zeitlichen Anteil separieren kann. Sofern eine Diffusionsgleichung den zeitlichen Anteil beschreibt, ist es möglich, über alle Energieüberträge Ei in ((5)) zu integrieren. Mit Hilfe dieser in der Literatur als "quasi-elastische Näherung" bekannten Vereinfachung erhält man den differentiellen Wirkungsquerschnitt pro Raumwinkelelement $d\Omega$. VAN HOVE konnte zeigen, daß dieser der statischen Suszeptibilität $\chi_a = \chi'(\omega = 0)$ proportional ist.

Tabelle 4 zeigt die einzigen beiden bisher nach diesem Verfahren ermittelten Werte für γ.

Tabelle 4

Verfasser	γ
MINKIEWICZ (1)	1.58 ± 0.15
STUMP (22)	1.44

6. 3. Eigene Meßergebnisse

Die doppelt-logarithmische Auswertung von Abbildung 15 ist in Abbildung 20 für T>Tc dargestellt. Es ergab sich für den kritischen Exponenten von χ' ein Wert von $\gamma = 1.41 \pm 0.02$ im Bereich von $10^{-4} \leq \varepsilon \leq 8 \cdot 10^{-3}$ im Einklang mit den theoretischen Ergebnissen nach STANLEY (13) und JASNOW (12). Für $\varepsilon < 10^{-4}$ zeigt die Gerade eine Abrundung. Dies dürfte (23) auf Verunreinigungen und Inhomogenitäten zurückzuführen sein und wurde durch vorläufige Messungen an reinerem Nickel bestätigt. Entscheidend für die log-log Auswertung ist die Ermittlung des richtigen Tc-Wertes. In Abbildung 20 wurde mit den Werten aus Abbildung 15 der Curiepunkt graphisch so ermittelt, daß folgende zwei Forderungen erfüllt sind:

1. Die log-log Auftragung soll eine Gerade ergeben und
2. für T→Tc soll dabei die größtmögliche Anzahl von Meßpunkten aus Abbildung 15 erfaßt werden.

Es ergibt sich Tc = 632.28 ± 0.02 K.

Abbildung 15 zeigt im Realteil (χ') eine schwache, im Imaginärteil (χ'') hingegen eine stark ausgeprägte Frequenzabhängigkeit. Im abfallenden Teil der χ'-T Kurve für T>Tc ist der Realteil innerhalb der Meßgenauigkeit unabhängig von der Frequenz, in der $\log \chi' - \log \varepsilon$ Darstellung ergibt sich für alle Frequenzen die gleiche Gerade (• Meßpunkte für f = 6.0 kHz, + Meßpunkte für f = 0.6 kHz). Daher ist anzunehmen, daß im Temperaturbereich ($\varepsilon \gtrsim 10^{-4}$) χ' gleich der statischen Anfangssuszeptibilität $\chi_a = \chi(\omega = 0)$ gesetzt werden darf.

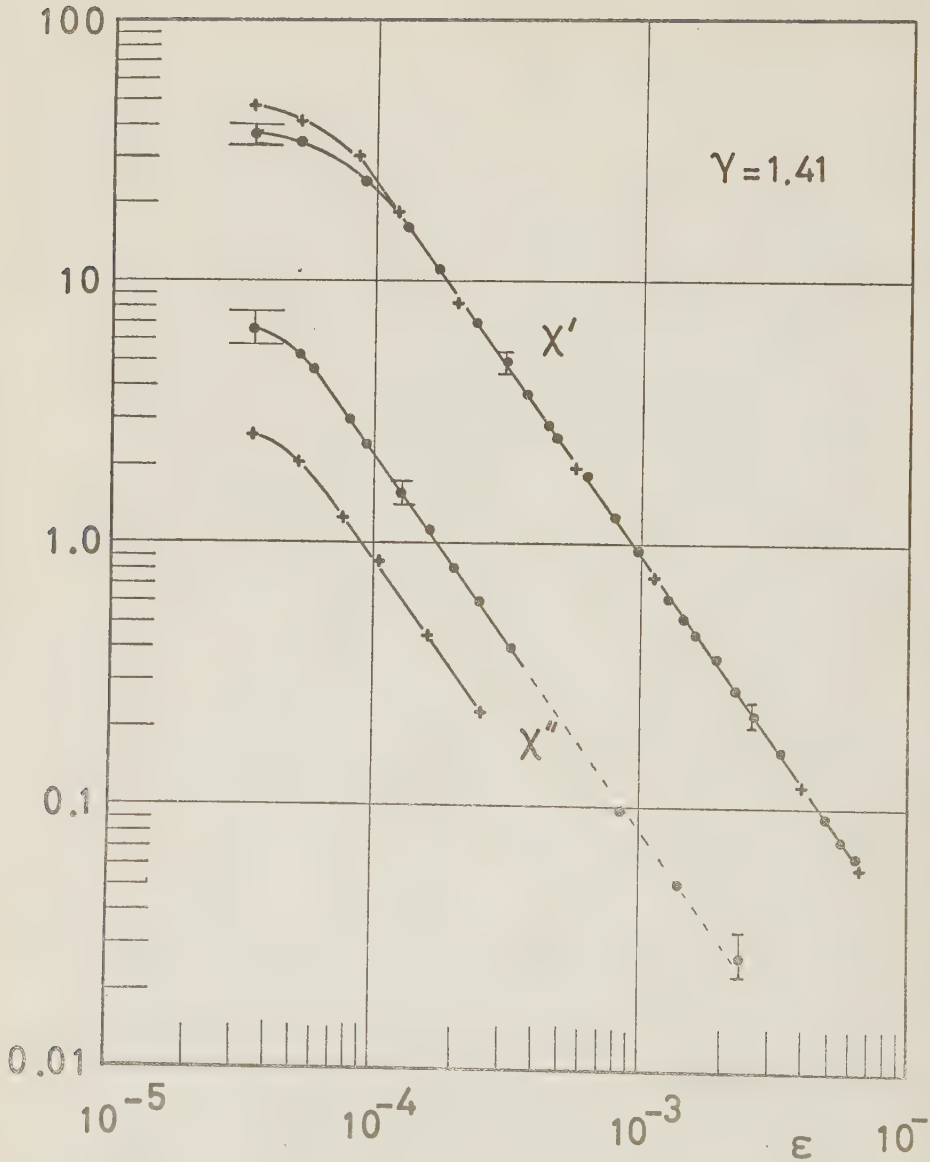


Abb. 20 Doppelt logarithmische Auftragung von χ' und χ'' als Funktionen von ε , für zwei Frequenzen + = 0.6, und = 6.0 kHz. Für $\varepsilon \gtrsim 3 \cdot 10^{-4}$ war die Meßgenauigkeit bezüglich χ'' zu gering. Für f = 6.0 kHz sind 3 vorläufige -Meßpunkte eingetragen.

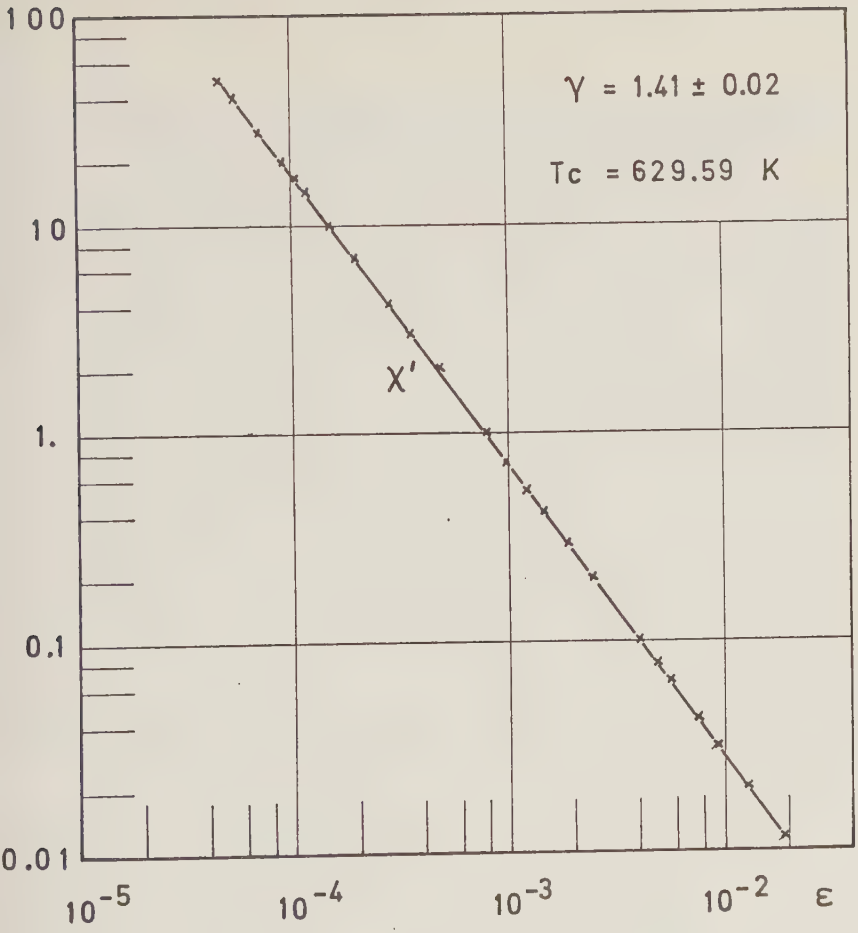


Abb. 20a Doppelt logarithmische Auswertung von $\chi' \propto \varepsilon^{-\gamma}$, gemessen an einer Reinstnickel Probe (JOHNSON u. MATTHEY 99.9975 % Reinheit) von L. WUNSCH (24). Im Gegensatz zu Abbildung 20 - den Ergebnissen der wesentlich unreineren Nickel-S Probe - ist die Abrundung für $\varepsilon < 10^{-4}$ verschwunden.

$$\gamma = 1.41 + 0.02 \qquad 4 \cdot 10^{-5} \leq \varepsilon \leq 2 \cdot 10^{-2}.$$

Außerdem zeigt Abbildung 20 im Intervall $5\ 10^{-5} \leq \varepsilon \leq 5 \cdot 10^{-4}$ den Imaginärteil (χ'') in der doppelt logarithmischen Darstellung für die beiden Frequenzen 6.0 kHz (•) und 0.6 kHz (+). In der Kurve für 6.0 kHz sind einige vorläufige Punkte für größere ε-Werte eingetragen. Wie schon erwähnt, ist das Verhältnis von Imaginärteil zu Realteil maximal von der Größenordnung 0.1. Die Empfindlichkeit der Messung nimmt daher für χ'' mit steigendem ε sehr stark ab. Da ferner χ'' dem Wechselstromverlustwiderstand ($\tilde{R}$) proportional ist und dieser sich als Differenz zwischen gemessenem Gesamtwiderstand und Ohmschen Widerstand der Spulenwicklung ergibt, steigt für $\varepsilon > 5 \cdot 10^{-4}$ der Meßfehler von χ'' stark an. (Vergl. 4. 1.)

Aus den Meßergebnissen können für den kritischen Exponenten γ und damit für die Temperaturabhängigkeit der komplexen Suszeptibilität drei Aussagen gewonnen werden. Für eine konstante Meßfrequenz und T>Tc gilt:

1. In den angegebenen ε-Intervallen hat γ für Real- u n d Imaginär-teil der komplexen Suszeptibilität den gleichen Wert.

   $\chi' = \chi'_o \cdot \varepsilon^{-\gamma}$ $\qquad 10^{-4} \leq \varepsilon \leq 8 \cdot 10^{-3}$

   $\chi'' = \chi''_o \cdot \varepsilon^{-\gamma}$ $\qquad 4 \cdot 10^{-5} \leq \varepsilon \leq 3 \cdot 10^{-4}$

   Unter χ'_o und χ''_o sind die χ'- und χ''-Werte für $\varepsilon^{-\gamma} = 1$, bzw. T = 2·Tc zu verstehen.

2. Im Intervall $0.6 \leqq \omega/2\pi \leqq 6.0$ kHz ist γ unabhängig von der Frequenz des angelegten Wechselfeldes.

3. Der numerische Wert $\gamma = 1.41 + 0.02$ stimmt innerhalb der Meßgenauigkeit mit den theoretischen Werten nach JASNOW (11) und STANLEY (12) überein.

Kritische Bemerkungen

Zu 1. Nach den KRAMERS-KRONIG Relationen müssen Real- und Imaginär-teil einer komplexen "Response-Funktion" über ihre Frequenzabhängigkeit ineinander transformierbar sein. In diesen Transformationen kommt keine Temperaturabhängigkeit vor, sie gelten daher im Prinzip für T = const, bzw. ε = const. Dann müssen bei festgehaltener Frequenz (ω = const.) χ' und χ'' das gleiche Temperaturverhalten zeigen. Aussage 1 bestätigt dies im Rahmen der Meßgenauigkeit.

Zu 2. Eine Abhängigkeit des kritischen Exponenten γ von der Frequenz des angelegten Wechselfeldes konnte innerhalb der Fehlergrenzen für γ nicht nachgewiesen werden. Neuere Messungen von L. WUNSCH (24) an Reinstnickel lassen eine schwache Abhängigkeit $\gamma(\omega)$ vermuten.

Zu 3. Die bisherigen Messungen mit äußeren Feldern (Größenordnung bis ca. 100 Oe) nach Tabelle 3 ergeben einen Wert von γ = 1.30....1.35. Die theoretischen Modellrechnungen in Tabelle 2 liefern unter der Voraussetzung $H_i = 0$ und für Spin-1/2 HEISENBERG Modell ein γ von 1.40 bis 1.43. Die gute Übereinstimmung des eigenen γ-Wertes mit diesen Ergebnissen ist wohl darauf zurückzuführen, daß bei meiner Meßmethode der Grenzfall $H_i \rightarrow 0$ in sehr guter Näherung erfüllt war, wie in Ziffer 4. 6. und Abbildung 12 nachgewiesen wurde.

Aus Messungen des Depolarisationsgrades von Neutronen hat REKVELDT (25) eine Abhängigkeit des kritischen Exponenten vom äußeren Feld festgestellt. In Abbildung 21, die der Arbeit von REKVELDT entnommen wurde, liefert die Extrapolation $H \rightarrow 0$ einen Wert $\gamma_p = 0.65$. REKVELDT konnte bei seinen Messungen sowohl die parallele Suszeptibilität mit dem Exponenten γ_p als auch die senkrechte Suszeptibilität mit dem Exponenten γ_D getrennt bestimmen. Als Ursache für den überraschenden kleinen Wert von γ_p vermutet REKVELDT den Einfluß eines Anisotropiefeldes, dessen Überlagerung mit dem Meßfeld die Werte für die beiden Komponenten der Suszeptibilität verfälschte.

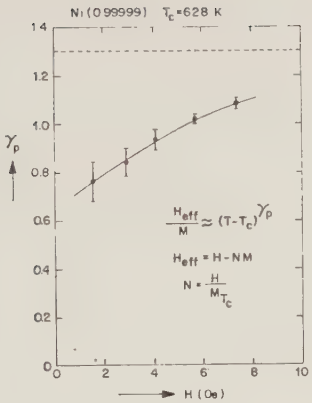


Abb. 21 γ_p als Funktion des Feldes H nach REKVELDT. (Unter γ_p ist der krit. Exponent der parallelen Suszeptibilität zu verstehen.)

Als arithmetischen Mittelwert aus γ_p und dem Exponenten der senkrechten Suszeptibilität γ_D erhält REKVELDT

$$1/2\ (\gamma_p + \gamma_D) = 1.33.$$

Da meine Meßmethode nur die ε-Abhängigkeit der parallelen Suszeptibilität ergibt, kann diese Mittelung nicht weiter untersucht werden.

Vielmehr würde nach den bisherigen Messungen der parallelen Suszeptibilität im äußeren Feld $\gamma(H_a)$ nach

Tabelle 3, dem eigenen Ergebnis $\gamma(5\ \mathrm{mOe})$ und den theoretischen Voraussagen $\gamma(H_i \equiv 0)$ nach Tabelle 2 folgen,

$$\gamma(H_i \equiv 0) = \gamma(5\ \mathrm{mOe}) = 1.41 > \gamma(H_a) = 4/3,$$

im Widerspruch zu den γ_p-Werten nach REKVELDT in Abbildung 21.

Abschließend soll die Abweichung vom linearen Verlauf für $\varepsilon < 10^{-4}$ in Abbildung 20 diskutiert werden. Als mögliche Ursachen für diese Abrundung werden die endliche Ausdehnung der Kristallite und die Verunreinigung durch Fremdatome untersucht.

Die Korrelationslänge (ξ) gehorcht für T>Tc dem Potenzgesetz $\xi = \xi_o \cdot \varepsilon^{-\nu}$, mit dem kritischen Exponenten $\nu = 2/3$. Meßwerte für Nickel nach CRAIG (26) sind $\xi_o \simeq 0.9$ Å und $\nu \simeq 0.63$. Wird die Korrelationslänge (ξ) gleich dem mittleren Kristallitdurchmesser (ca. 40 μ) aus Abbildung 13 gesetzt, also dem Durchmesser eines homogenen Nickelbereiches, so ergibt sich eine zugehörige reduzierte Temperatur

$$\varepsilon \approx 3 \cdot 10^{-9}.$$

Nach dieser Abschätzung sollten die statischen Potenzgesetze für $\chi'(\varepsilon)$ und $\chi''(\varepsilon)$ bis $\varepsilon \approx 3 \cdot 10^{-9}$ erfüllt sein. Damit scheidet der endliche

Durchmesser der Kristallitte als Ursache für die Abrundung in Abbildung 20 aus.

In seiner Diplomarbeit führt L. WUNSCH (24) unter anderem ähnliche Messungen an Reinstnickel (99.9975 %) durch. Die Abbildung 20a zeigt als erstes Ergebnis χ' als Funktion von ε . Im Gegensatz zu Abbildung 20 ist die Abrundung verschwunden. Es folgt daraus, daß dieser Effekt vermutlich auf Verunreinigung durch Fremdatome zurückzuführen ist.

6. 4. Der Temperaturbereich unterhalb Tc

6. 4. 1. Theoretische Ansätze für die Auswertung

Für Temperaturen T<Tc erfaßt die Messung der komplexen Suszeptibilität, nach Abbildung 14a, b, c, die Superposition aus dem ferromagnetischen Anteil χ_f und dem Anteil χ_p der Parasuszeptibilität.

$$\begin{aligned} T<Tc \quad & \chi' = \chi'_f + \chi'_p \\ & \chi'' = \chi''_f + \chi''_p, \end{aligned} \qquad ((8))$$

$$\begin{aligned} \text{für } T>Tc \quad & \chi' = \chi'_p \quad \chi'_f = 0 \\ & \chi'' = \chi''_p \quad \chi''_f = 0. \end{aligned}$$

Um die Superposition in ((8)) zu prüfen, wird die spontane Magnetisierung (M_s) mit der induzierten Magnetisierung (M_p)

des Paraprozesses verglichen. Die spontane Magnetisierung gehorcht dem Potenzgesetz

$$M_s\ (T) \propto \varepsilon^{\beta}$$

mit dem kritischen Exponenten

$$\beta \simeq 1/3 \ldots . 1/2.$$

Bei der folgenden Auswertung entspricht dem am nächsten an Tc gelegenen Meßpunkt eine reduzierte Temperatur

$$\varepsilon = (Tc - T)/Tc \approx 3 \cdot 10^{-5}.$$

Mit dem Wert für Nickel M_s = 123 Gauss bei $\varepsilon = 10^{-2}$ (16) erhält man:

$$M_s\ (3 \cdot 10^{-5}) \simeq 8 \text{ Gauss}.$$

Die Parasuszeptibilität hat an dieser Stelle der Temperaturskala den Wert $\chi'_p \simeq 60$. Mit der gewählten Meßfeldstärke $\tilde{H} = 5 \cdot 10^{-3}$ Oe ergibt sich eine induzierte Magnetisierung $M_p \simeq 0.3$ Gauss.

Es gilt daher:

$$M_p < M_s \quad \text{an der Stelle } \varepsilon = 3 \cdot 10^{-5}.$$

Da für größere ε-Werte χ'_p stark abfällt (vergl. Abbildung 14 a, b, c), χ'_f aber zunimmt und nach ARAJS (21) β sich von 0.5 auf 0.34 reduziert, gilt ferner:

$$\text{Für } \varepsilon > 3 \cdot 10^{-5} \quad M_p \ll M_s.$$

Für T<Tc ist der ferromagnetische Anteil (χ_f) der Suszeptibilität um höchstens 3% zu groß gegenüber dem vollkommen feldfreien Fall. Die in ((8)) benutzte Superposition ist in guter Näherung zulässig.

Nach der Theorie von GINZBURG und LANDAU kann das thermodynamische Potential für T→Tc in Form einer Reihenentwicklung dargestellt werden. Ausgehend von dieser Theorie zeigte z. B. BJELOV (27), daß zwischen der Anfangssuszeptibilität des Paraprozesses (χ_p) oberhalb und unterhalb des kritischen Punktes ein Zusammenhang besteht, die sogenannte "rule of two".

Für $H_a \rightarrow 0$ soll gelten:

$$\frac{\chi_p\ (T>Tc)}{\chi_p\ (T<Tc)} = 2 \qquad ((9))$$

Nach KADANOFF (28) soll die Temperaturabhängigkeit der Anfangssuszeptibilität des Paraprozesses oberhalb und unterhalb Tc die gleiche sein, also

$$\chi_p\ (T>Tc) \propto \varepsilon^{-\gamma}$$
$$\chi_p\ (T<Tc) \propto \varepsilon^{-\gamma'} \qquad ((10))$$

mit der Symetrierelation $\gamma = \gamma'$.

Für Temperaturen oberhalb ca. 473 K läßt sich die ferromagnetische Anfangssuszeptibilität χ_f darstellen durch (29)

$$\chi_f\,(T) \propto \frac{M_s^{\,2}}{\sum a_i \cdot K_i\,(T)} \qquad ((11))$$

M_s : Spontane Magnetisierung.

$\sum K_i\,(T)$: Summe über alle magnetischen Anisotropieenergien.

a_i : Koeffizienten, die von der Art der beteiligten Magnetisierungsvorgänge (Drehprozesse, Wandverschiebungen) abhängen.

Während die Temperaturabhängigkeit von M_s unterhalb von Tc für $\varepsilon < 10^{-2}$ in Intervallen bekannt ist ($M_s \propto \varepsilon^{\beta}$ mit $\beta \simeq 1/2 \ldots 1/3$), liegen über die ε-Abhängigkeit der Anisotropieterme bis heute keine Daten vor. Setzt man voraus, daß einer dieser Terme (K_x) groß ist gegen alle übrigen und sich die Temperaturabhängigkeit von $\sum a_i \cdot K_i\,(T)$ unmittelbar unterhalb von Tc in der Form $K_x \propto \varepsilon^{\mu}$ schreiben läßt, dann ist nach ((11)) die ferromagnetische Anfangssuszeptibilität χ_f proportional zu

$$\chi_f\,(\varepsilon) \propto \varepsilon^{2\beta - \mu} \qquad ((12))$$

Ergeben sich in einer log - log Darstellung von χ_f gegen ε Geraden, so können daraus folgende Aussagen gewonnen werden:

1. Die auf die Proportionalität ((12)) führende Voraussetzung ist wenigstens qualitativ richtig und

2. die Steigungen liefern $2\beta - \mu$ und damit bei bekanntem β den numerischen Wert für μ.

Nun ist nach Messungen mehrerer Autoren z. B. (30, 31) bekannt, daß der kritische Exponent β der spontanen Magnetisierung nicht konstant ist , sondern von ε abhängt. Bei der folgenden Analyse beziehe ich mich auf die 1971 erschienene Arbeit von ARAJS und Mitarbeitern (21), die für die Exponenten β folgende Angaben machten:

$$\beta = 0.5 \pm 0.02 \quad \text{für } 3\cdot10^{-5} \leq \varepsilon \leq 5\cdot10^{-3}$$
$$\beta = 0.34 \pm 0.02 \quad \text{für } \varepsilon > 5\cdot10^{-3}$$

Der ferromagnetische Anteil der komplexen Suszeptibilität wurde nun folgendermaßen ermittelt:

$$\chi'_f = \chi'_{\text{gemessen}}\,(T<Tc) - A\cdot\chi'_p(T>Tc)$$
$$\chi''_f = \chi''_{\text{gemessen}}\,(T<Tc) - A\cdot\chi''_p(T>Tc) \qquad ((13))$$

mit dem Gewichtsfaktor A. Unter $\chi'(T>Tc)$ und $\chi''(T>Tc)$ sind die Werte aus Abbildung 15 zu verstehen.

Für die "rule of two" beträgt dieser Gewichtsfaktor $A = 1/2$. Auf Grund neuer theoretischer Ansätze ist die

"Rule of two" jedoch sehr umstritten. Nach HOHENBERG (32) ergeben verbesserte Modellrechnungen statt des Faktors 2 in Gleichung ((9)) Faktoren von 4 bis 5. Die Auswertung wurde für folgende 4 Gewichtsfaktoren (A) durchgeführt:

A = 1/2 (entsprechend der "Rule of two"
A = 1/4 (entsprechend (32))
A = 1/5 (entsprechend (32))
A = 1 (entsprechend einer vollkommen symmetrischen Spinsuszeptibilität für $T > Tc$ und $T < Tc$).

Die Meßpunkte in den folgenden Abbildungen wurden dabei aus Abbildung 15 für symmetrische Wertepaare von ε um die Stelle $T = Tc$ ermittelt.

6. 4. 2. Meßergebnisse für χ'_f

Die Abbildungen 22 und 24 zeigen den ferromagnetischen Realteil (χ'_f) der komplexen Suszeptibilität als Funktion von ε in doppelt-logarithmischer Darstellung. Die Indizierung (1/2), (1/4) und (1) bedeuten die vorher geschilderten Möglichkeiten der Auswertung mit dem Gewichtsfaktor A. Die Ergebnisse für A = 1/5 unterscheiden sich nur unwesentlich von denen für A = 1/4 und sind nicht in den Abbildungen eingezeichnet. Setzt man μ als konstant im ganzen betrachteten ε-Bereich voraus*), so muß die Änderung der Steigung $(2\beta - \mu)$ auf die Änderung des Wertes für β nach ARAJS (21) zurückgeführt werden.

*) vergl. 6. 4. 4. "Schlußbemerkung"

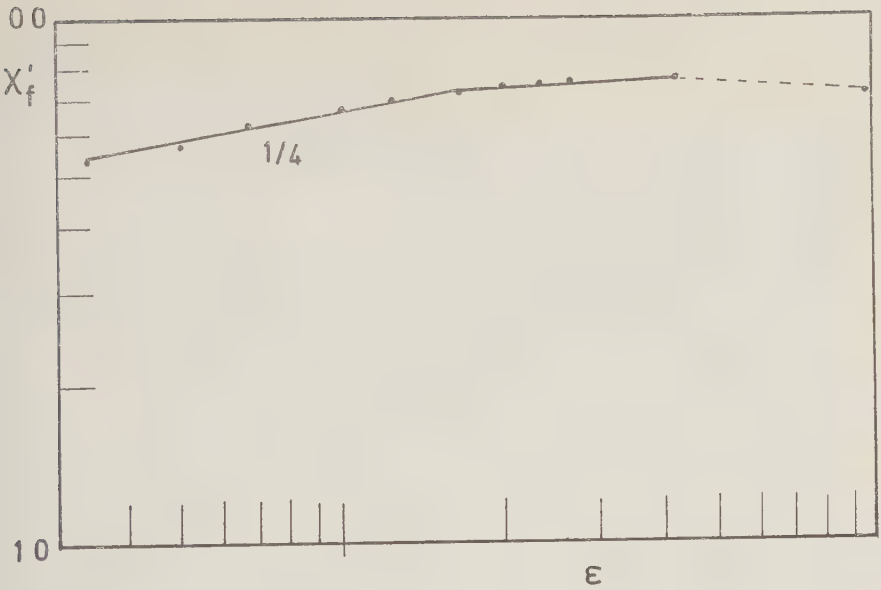


Abb. 22 Der ferromagnetische Realteil χ'_f als Funktion von ε.

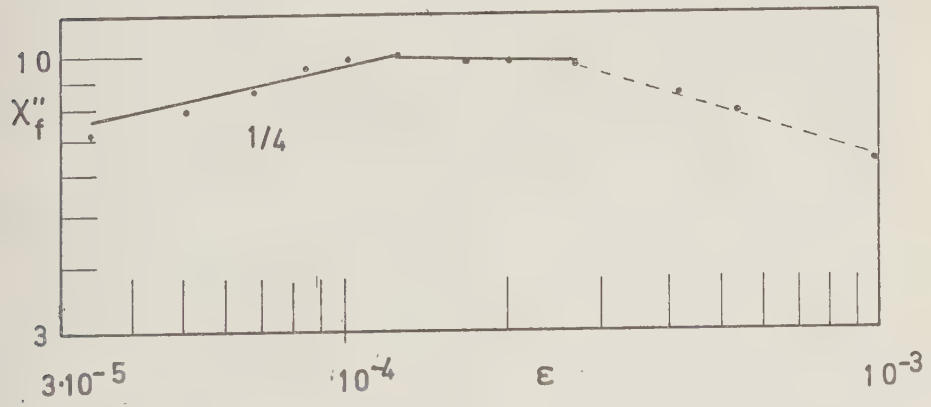


Abb. 23 Der ferromagnetische Imaginärteil χ''_f als Funktion von ε.

Zu Abb. 22 - 25: χ'_f bzw. χ''_f als Funktion von ε in doppelt logarithmischer Darstellung. Die Indizierungen 1/4, 1/2, 1, bedeuten die Gewichtsfaktoren A und damit die in 6. 4. 1. geschilderten Möglichkeiten der Auswertung. Die Kurven für A= 1/5 fallen praktisch mit denen für A = 1/4 zusammen und sind nicht eingetragen.

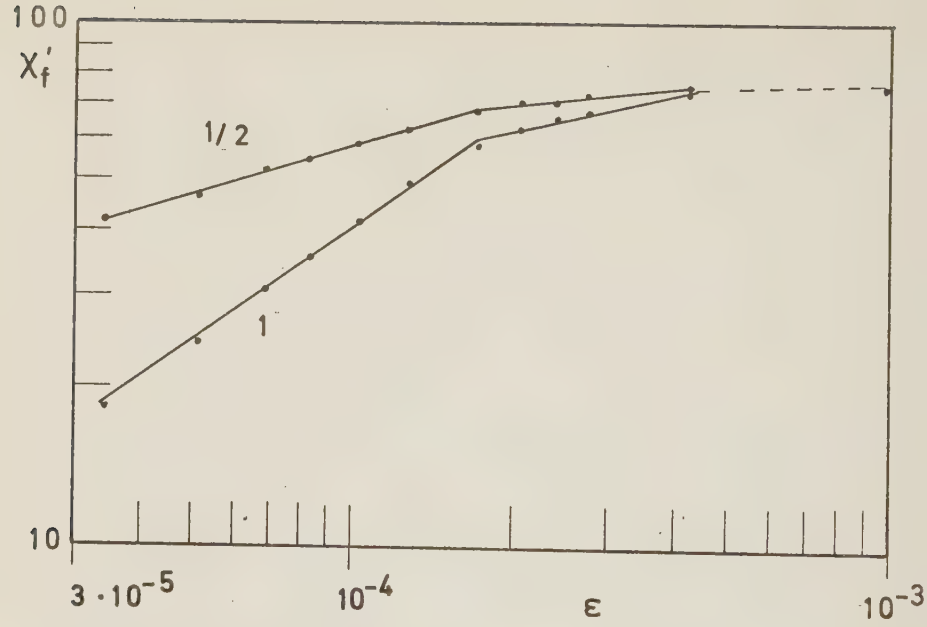


Abb. 24 analog wie Abb. 22

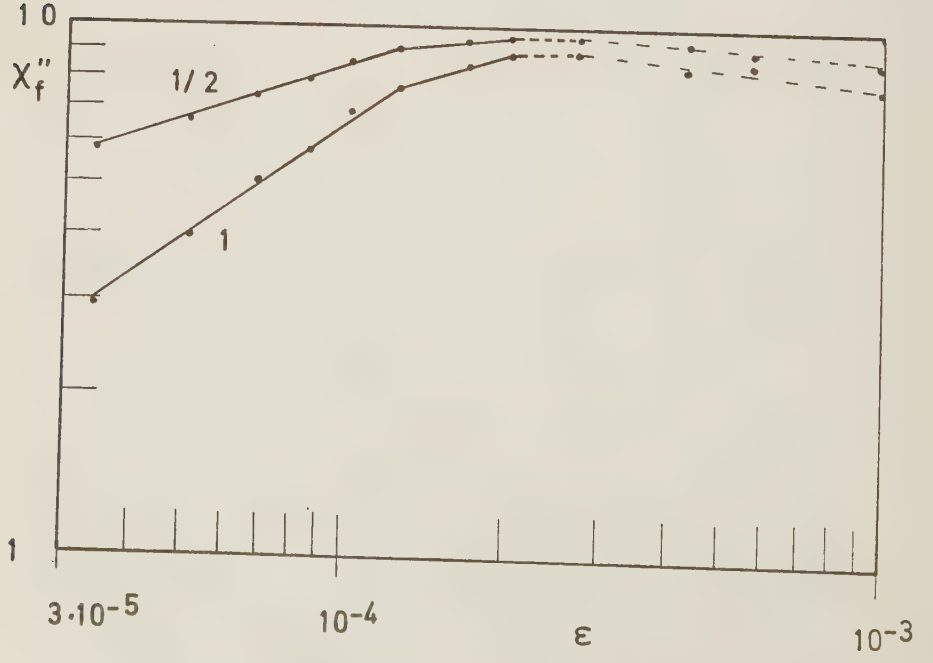


Abb. 25 analog wie Abb. 23

Tabelle 5

A	$2\beta-\mu$	ε-Bereich	μ	
1/2	0.306	$3\cdot10^{-5}$	0.694	
1/4	0.176	bis	0.824	$\beta = 0.5$
1/5	0.167		0.833	
1	0.713	$1.7\cdot10^{-4}$	0.287	
1/2	0.120	$1.7\cdot10^{-4}$	0.600	
1/4	0.052	bis	0.668	$\beta = 0.34$
1/5	0.052		0.668	
1	0.228	$4.2\cdot10^{-4}$	0.492	

Diese Werte entsprechen einer Meßfrequenz $\omega/2\pi$ = 0.6 kHz.

6. 4. 3. Meßergebnisse für χ''_f

Die Abbildungen 23 und 25 zeigen das Ergebnis der Auswertung für den ferromagnetischen Imaginärteil (χ''_f) als Funktion von ε für die Meßfrequenz $\omega/2\pi$ = 6.0 kHz. Auch hier ergibt sich eine Änderung der Steigung bei $\varepsilon \simeq 1.4\cdot10^{-4}$.

Analog wie vorher erhält man:

Tabelle 6

A	$2\beta-\mu$	ε-Bereich	μ	
1/2	0.296	$3\cdot10^{-5}$	0.704	
1/4	0.178	bis	0.822	$\beta = 0.5$
1/5	0.260		0.740	
1	0.702	$1.4\cdot10^{-4}$	0.298	
1/2	0.105	$1.4\cdot10^{-4}$	0.615	
1/4	0	bis	0.720	$\beta = 0.34$
1/5	0.010		0.710	
1	0.306	$2.2\cdot10^{-4}$	0.414	

Da, wie später gezeigt wird, χ'' streng linear mit der Meßfrequenz ω ansteigt, liefern die Ergebnisse für die anderen Frequenzen zu den in Abbildung 23, 25 gezeigten einfach nach unten parallel verschobene Geraden.

6. 4. 4. Experimentelle Aussagen

1. Die Kurven in Abbildung 22, 24 und in Abbildung 23, 25 scheinen die in ((12)) aufgestellte Hypothese der Existenz e i n e s kritischen Exponenten μ für die Temperaturabhängigkeit der Summe der magnetischen Anisotropieenergieen zu erhärten (abgesehen von Abbildung 25), und die Voraussetzung

$K_x \propto \varepsilon^{\mu}$ zu rechtfertigen.

2. Bei der Analyse der χ'_f und χ''_f Daten wurde μ als konstant bzw. unabhängig von β angenommen (vergl. "Schlußbemerkung in 6. 4. 4.).

   Der Knick in den Geraden (Abbildungen 22 - 25) wurde der ε -Abhängigkeit des kritischen Exponenten β zugeschrieben. Über eine mögliche Änderung von μ in den gleichen ε -Bereichen, in denen sich β von 0.5 auf 0.34 ändert, ist nichts bekannt.

3. Aus den Daten der Tabellen 5 und 6 werden die Mittelwerte $\bar{\mu}(A)$ gebildet. Tabelle 7 enthält die numerischen Ergebnisse. In Abbildung 26 sind die Werte von Tabelle 7 eingetragen.

Tabelle 7

$\bar{\mu}(1/5)$	$= 0.740 \pm 0.09$
$\bar{\mu}(1/4)$	$= 0.758 \pm 0.07$
$\bar{\mu}(1/2)$	$= 0.653 \pm 0.05$
$\bar{\mu}(1)$	$= 0.370 \pm 0.11$

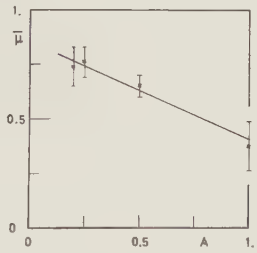


Abb. 26 $\bar{\mu}$ als Funktion des Gewichtsfaktors A.

4. Bei dieser Mittelwertbildung wurde vorausgesetzt, daß die Exponenten $(2\beta - \mu)$ bzw. μ selbst für den Realteil (χ'_f) und den Imaginärteil (χ''_f) der komplexen ferromagnetischen Anfangssuszeptibilität den gleichen Wert haben. Im Rahmen der Genauigkeit des graphischen Auswertverfahrens ist dies auch gut erfüllt (vergl. Tabelle 5 und 6).

Kritik

1. Da die log - log - Auftragungen und damit die Bestimmung kritischer Exponenten sehr empfindlich auf die Bildung von Differenzen gemäß ((13)) reagieren, ist die Bestimmung von μ stark von A abhängig.

2. Das für die Auswertung benutzte ε-Intervall ist zu klein.

3. Eine verfeinerte Analyse einerseits zu höheren ε-Werten hin, andererseits zu verbesserten numerischen Werten von μ ist nur durch eine Steigerung der Meßgenauigkeit zu erreichen.

Schlußbemerkung

Nach den Messungen von ARAJS (21) und anderer Autoren sowohl an Nickel als auch an Yttriumeisengranat ist bekannt, daß sich β für größere ε-Werte $(10^{-3} - 10^{-1})$ mehr und mehr dem theoretischen Idealwert $\beta = 1/3$ annähert. Setzt man

nun $\bar{\mu}(1/5) \simeq \bar{\mu}(1/4) \simeq \bar{\mu}(1/2) \simeq 2/3$, so wäre der Exponent $2\beta - \mu$ gleich Null und die ferromagnetische Anfangssuszeptibilität in diesem ε-Bereich konstant. Dann folgt aus ((11)) für den Anisotropieterm K_x

$$K_x(\varepsilon) \propto M_s^2(\varepsilon).$$

Nach Abschätzungen von STEIGENBERGER und STIERSTADT (33) gilt für die Temperatur- bzw. ε-Abhängigkeit der Kristallenergie (K_k) und der Spannungsanisotropieenergie (K_s) dicht unterhalb Tc:

$$\begin{aligned} K_k(\varepsilon) &\propto M_s^n(\varepsilon) \text{ mit } n \gtrsim 4 \\ K_s(\varepsilon) &\propto M_s^6(\varepsilon) \end{aligned} \qquad ((14))$$

Würden K_k oder K_s in ((14)) wesentliche Beiträge liefern, so ergäbe sich in beiden Fällen ein kritischer Exponent $\mu < 0$. Dies wurde jedoch nicht beobachtet. Daher könnte der Energieterm K_x für $\varepsilon \gtrsim 10^{-3}$ die magnetostatische Energie (K_m) darstellen,

$$K_x(\varepsilon) = K_m(\varepsilon) = 1/2\, D \cdot M_s^2(\varepsilon) \text{ mit D als}$$

Entmagnetisierungsfaktor.

Für eine Toroidgeometrie ist der äußere Entmagnetisierungsfaktor D_a gleich 0, d. h. D muß dann gleich dem inneren Entmagnetisierungsfaktor D_i gesetzt werden.

Um zu dem Problem der ferromagnetischen Anfangssuszeptibilität, dicht unterhalb des Curiepunktes, quantiativere Aussagen machen zu können, sind verbesserte Meßdaten und vor allem eine exakte theoretische Angabe für A nötig. In diesem Sinne will ich die in Ziffer 6. 5. vorgelegten Ergebnisse als Anregungen zu dem interessanten und bisher vernachlässigten Fragenkomplex der Magnetisierungsprozesse dicht unterhalb Tc verstanden wissen.

7. Die Frequenzabhängigkeit der komplexen Suszeptibilität

7. 1. Experimenteller Befund

Denkt man sich in Abbildung 15 bis 19 für jede feste Temperatur T = const. senkrechte Schnitte durch die Meßkurven gelegt, so erhält man Real- und Imaginärteil der komplexen Suszeptibilität als Funktionen der Frequenz. Ein Beispiel für diese "Frequenzisothermen" zeigt Abbildung 27. Während χ'' sehr genau linear mit der Frequenz ansteigt, zeigt χ' eine schwache hyperbolische oder logarithmische Abnahme mit steigender Frequenz. Bezüglich χ'' ist Abbildung 27 repräsentativ für alle untersuchten Temperaturen. Die Frequenzabhängigkeit von χ' hingegen ist für $T < Tc$ und bis ungefähr Tc + 0.1 K analog wie in Abbildung 27 (vergl. 6. 1. und Abbildung 15 - 17). Für die Temperaturen $T > Tc + 0.1$ K entsprechend $\varepsilon > 10^{-4}$ ist χ' konstant im ganzen Frequenzintervall. Eine geschlossene Theorie der Frequenzabhängigkeit

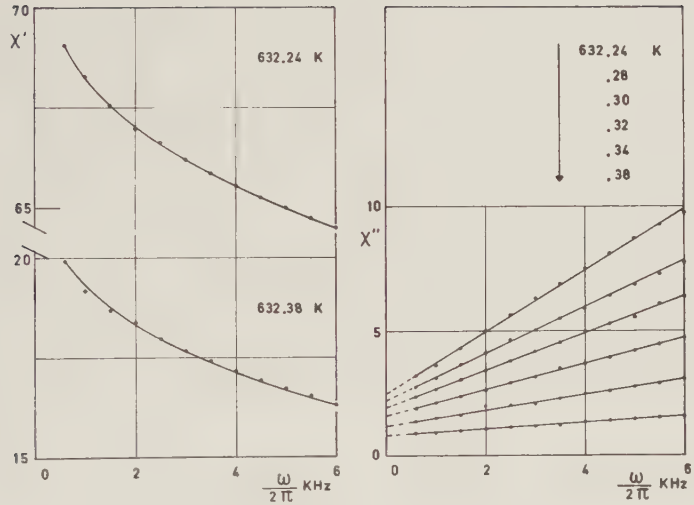


Abb. 27 χ' und χ'' als Funktionen der Frequenz für T = const. Die beiden χ'-Kurven haben verschiedene Maßstäbe.

der komplexen Suszeptibilität im C u r i e g e b i e t gibt es bis heute nicht. Wohl aber können die verschiedenen Verlust- und Dämpfungsmechanismen im ferromagnetischen Metall theoretisch diskutiert und mit den experimentellen Ergebnissen verglichen werden. Dies soll im Folgenden versucht werden.

7. 2. Der Imaginärteil als Funktion der Frequenz

7. 2. 1. Die Wirbelstromverluste

Der am einfachsten übersehbare Verlustmechanismus im ferromagnetischen Metall ist der Wirbelstromeffekt. Für tiefe Frequenzen ($\omega < 10^7$ sec^{-1}) geben KELLER (34), KRONMÜLLER (35) und FELDKELLER (36) für die Frequenzabhängigkeit von $\overline{\chi}$ eine Gleichung vom Relaxationstypus an:

$$\overline{\chi} = \chi_a \frac{1}{1+\omega^2\tau_w^2} - i\cdot\chi_a \frac{\omega\cdot\tau_w}{1+\omega^2\cdot\tau_w^2} \qquad ((15))$$

mit τ_w als Zeitkonstante der Wirbelströme.

$$\tau_w = \frac{\mu_a \cdot d^2}{12\cdot\varrho} \qquad ((16))$$

μ_a: Anfangspermeabilität
d: Foliendicke (mm)
ϱ: spez. elektr. Widerstand ($\Omega\,mm^2/m$)

Ist $\omega\cdot\tau_w \ll 1$, so reduziert sich Gleichung ((15)) auf

$$\overline{\chi} = \chi_a - i\,\chi_a\cdot\omega\cdot\tau_w \qquad ((17)).$$

Mit dem Wert des spezifischen Widerstandes von Nickel nach LANDOLT-BÖRNSTEIN (IV Band "Technik", 2. Teil, S. 328, ϱ(360 Grad Celsius $\simeq 24\,\mu\Omega$cm) und maximalem gemessenem $\chi' \approx \chi_a$ bzw. $\mu' \approx \mu_a$ ergibt sich als größte Wirbelstromzeitkonstante:

$$\tau_{w,\,max} \simeq 1.08\cdot10^{-6}\ (sec).$$

Dann folgt als numerischer Wert für den Faktor

$$1/(1 + \omega^2 \cdot \tau_{W,max}^2) = 0.998.$$

Das heißt, die obige Näherung, die von ((15)) auf ((17)) führt, ist sehr gut erfüllt.

Daher sollte nach ((17)), der Imaginärteil (χ'') der komplexen Suszeptibilität linear mit der Meßfrequenz ansteigen. Dies wurde bei allen untersuchten Temperaturen mit großer Genauigkeit bestätigt. (Vergl. Abbildung 27, Abbildung 28 bis 31 zeigen weitere Beispiele.) Nach der klassischen Wirbelstromtheorie sollte sich also der Imaginärteil gemäß der Beziehung

$$\chi''(\omega) = \chi_a \cdot \omega \cdot \tau_W \qquad ((18))$$

quantitativ berechnen lassen.

Nach den Messungen von FELDKELLER (36) und anderen Autoren findet man für dünne Bleche stets eine größere gemessene Zeitkonstante (τ_{gem}), als die nach der Wirbelstromtheorie ((15)) berechnete (τ_w). FELDKELLER (36) definierte den Verlustfaktor $\eta = \tau_{gem}/\tau_w > 1$, der auch als Verlustüberhöhung bezeichnet wird.

Damit erhält man für den Imaginärteil der komplexen Suszeptibilität:

$$\chi''(\omega) = \chi_a \cdot \omega \cdot \tau_W \cdot \eta \qquad ((19))$$

Abb. 28

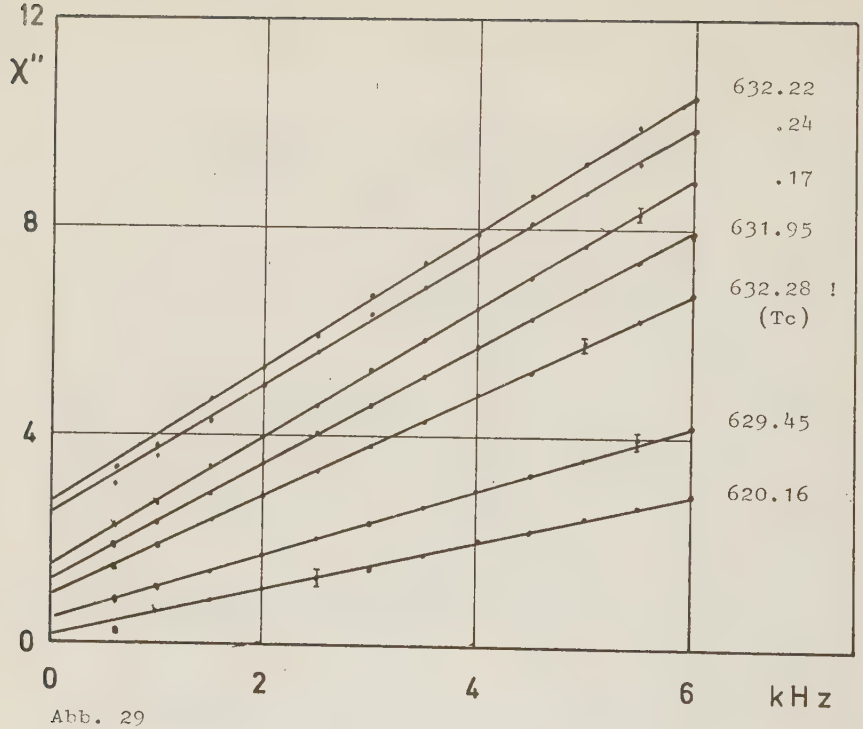
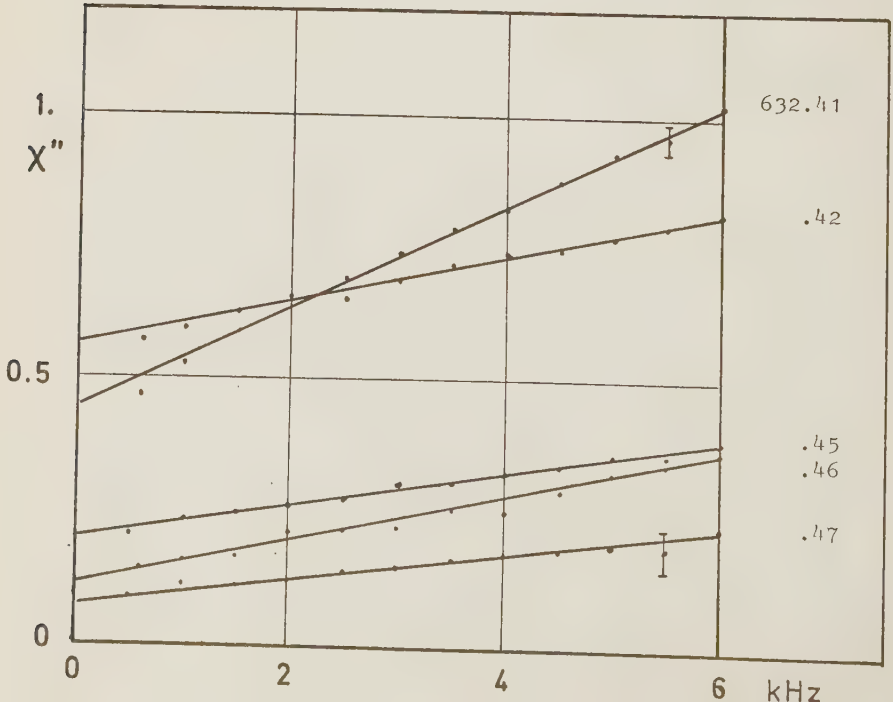

12
χ''
8
4
0
0
2
4
6
kHz
632.22
.24
.17
631.95
632.28 !
(Tc)
629.45
620.16

Abb. 29


1.
χ''
0.5
0
0
2
4
6
kHz
632.41
.42
.45
.46
.47

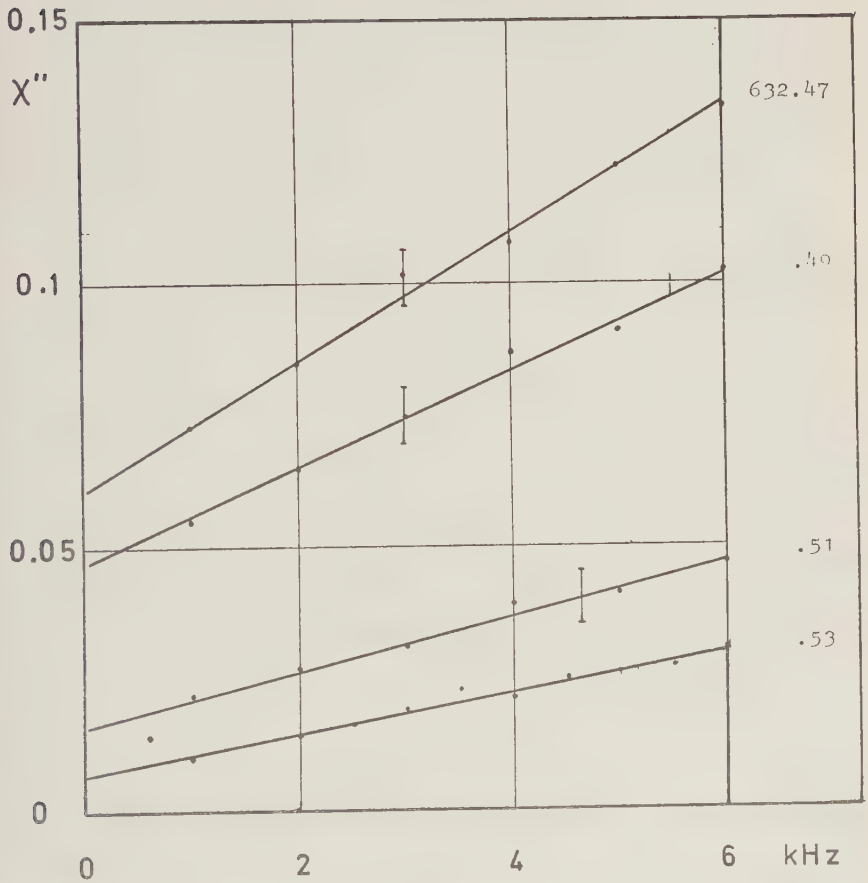


Abb. 30

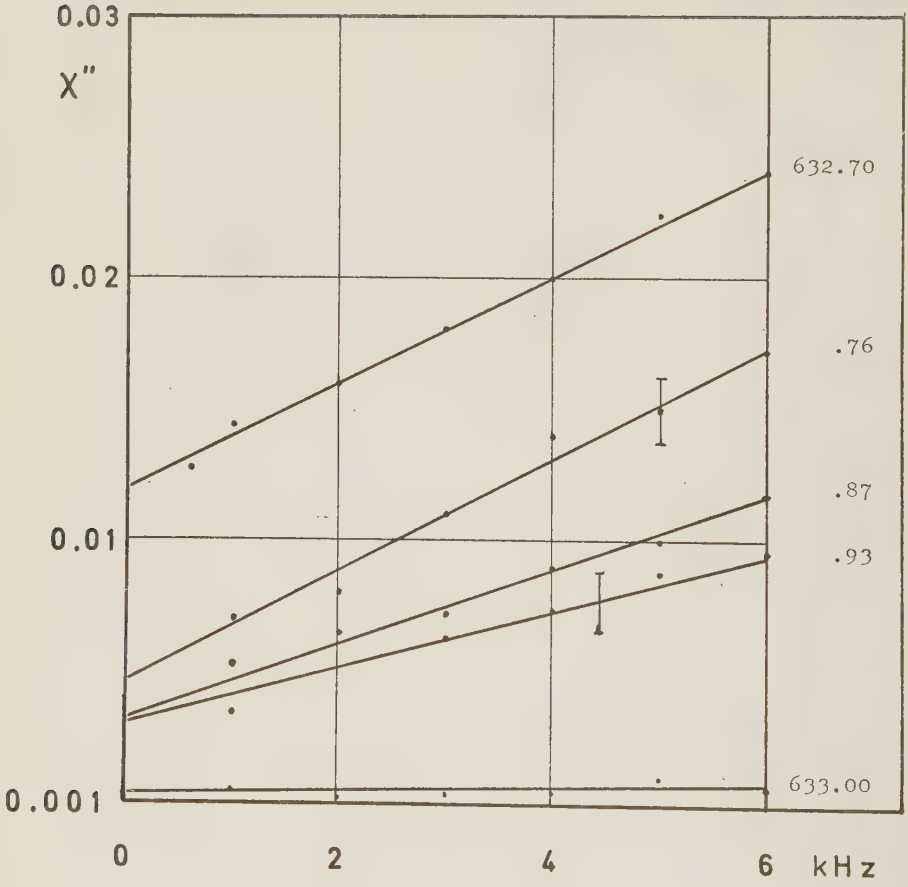


Abb. 31

Zu Abb. 28 - 31: Der Imaginärteil χ'' als Funktion der Frequer $\omega/2\pi$. Parameter ist die Temperatur in K. Bei den Geraden 632.41 K und 632.42 K in Abbildung 29 liegt ein systematischer Fehler vor. Entweder wurde die Temperatur fehlerhaft abgelesen oder sie hat sich während der Messung geändert.

Es ist nunmehr zu klären, wodurch die Verlustüberhöhung (η) bedingt ist. FELDKELLER (36) hat zunächst gezeigt, daß durch Inhomogenitäten der statischen Anfangssuszeptibilität η -Werte bis $\eta \approx 2$ auftreten können. Als Ursache für ortsabhängige Schwankungen von χ_a gibt FELDKELLER einmal Verunreinigungen des Materials - etwa durch Fremdatome - zum anderen die Probenvorbehandlung - Walzen, Ziehen, Oberflächenverunreinigung und unvollständige Rekristallation an. Diese örtlichen Schwankungen sind frequenzunabhängig. Daraus folgt, daß η nicht von der Frequenz abhängt. Da es sich bei der untersuchten Probe um ein kaltgewalztes, relativ unreines Nickel (99.95%) handelte, dessen vollständige Rekristallation erst bei Temperaturen von ca. 50 Grad unter dem Schmelzpunkt abgeschlossen ist, wird η wahrscheinlich größer als 1 sein. Neben diesen Ursachen kann noch ein weiterer Dämpfungsmechanismus zur Verlustüberhöhung beitragen: Bringt man ein ferromagnetisches Material in ein Magnetfeld, dann präzediert die Magnetisierung überall um die Richtung des lokalen effektiven Feldes. Die Dämpfung dieser Präzessionsbewegung wird durch einen Energieaustausch, sowohl innerhalb des Spinsystems (Spin-Spin Relaxation) als auch zwischen dem Spin - System und einem anderen "Wärmespeicher", etwa dem Kristallgitter oder den Leitungselektronen (Spin-Gitter Relaxation) verursacht. Eine befriedigende Theorie dieser Erscheinungen, die man summarisch Spinrelaxation nennt, fehlt bis heute.

Die Abklingzeiten der Spinrelaxation liegen in der Größenordnung von 10^{-8} sec, die maximale Abklingzeit der Wirbelströme für maximale Anfangssuszeptibilität (χ_a) bzw. -permeabilität (μ_a) liegt in der Größenordnung von 10^{-6} sec. Für Temperaturen $T \simeq Tc + 0.6$ Grad wird $\chi' \simeq \chi_a \lesssim 1$. Dann wird die nach ((16)) oder ((20)) berechnete Abklingzeit der Wirbelströme vergleichbar mit der Abklingzeit der Spinrelaxation.

Die Messung liefert nun stets den totalen η-Wert, als Summe des Wirbelstromanomalie-Beitrages (η_w) und des Beitrages der Spinrelaxation (η_r). Um die beiden Anteile trennen zu können, müßte η als Funktion der Foliendicke (d) gemessen werden.

Dann gilt nach KNELLER (34):

$$\eta = \eta_w + \eta_r \quad \text{und}$$
$$\eta_w \propto d^{-1}, \text{ aber } \eta_r \propto d^{-2}.$$

Da bei den vorliegenden Messungen der Parameter d konstant war, kann nur der gesamte η-Wert angegeben werden. Um die Temperaturabhängigkeit von η aus den experimentellen Daten zu gewinnen, wurde folgendermaßen verfahren:

1. Aus den Steigungen der Wirbelstromgeraden (vergl. Abbildung 27 bis 31) und den zugehörigen Werten der Anfangssuszeptibilität

$\chi_a = \chi'(\omega/2\pi = 0.6$ kHz) wurde τ_{gem} ermittelt.

2. Aus Gleichung ((16)) wurde τ_W nach der klassischen Wirbelstromtheorie berechnet. Gleichung ((16)) läßt sich mit der Näherung $\chi'(0.6\text{ kHz}) \simeq \chi_a$ umschreiben zu:
$\tau_W = (\chi'(0.6\text{ kHz}) \cdot 1.37 + 0.11) \cdot 10^{-8}$ (sec) ((20))
($\varrho = 24\,\mu\Omega$cm, d = 50 μm)

Die nächste Abbildung (Abb. 32) zeigt als Ergebnis η als Funktion der Temperatur. Für Temperaturen unterhalb Tc scheint η in erster Näherung konstant zu sein: Als Mittelwert ergab sich:

$\overline{\eta} = 1.58$ im Intervall $(Tc - 10) \leq T \leq (Tc - 1)$ K,

in guter Übereinstimmung mit dem von FELDKELLER angegebenen Werten für die Wirbelstromanomalie:

$$\eta \approx 2, \text{ für } 200\,\mu m \leq d \leq 20\,\mu m.$$

Bei Überschreiten des kritischen Punktes Tc steigt η (Abbildung 33) stark an. Unter der Annahme, daß die Magnetisierungsvorgänge reine Drehprozesse sind und die Anfangssuszeptibilität $\chi_a \gg 1$ ist, gibt KITTEL (37) eine Formel für die Verlustüberhöhung (η_I), hervorgerufen durch Spinrelaxationen, an:

$$\eta_I = \frac{9 \cdot \lambda \cdot \chi_a}{4\pi \cdot \gamma^2 \cdot \tau_W \cdot M_S^2} \qquad ((21))$$

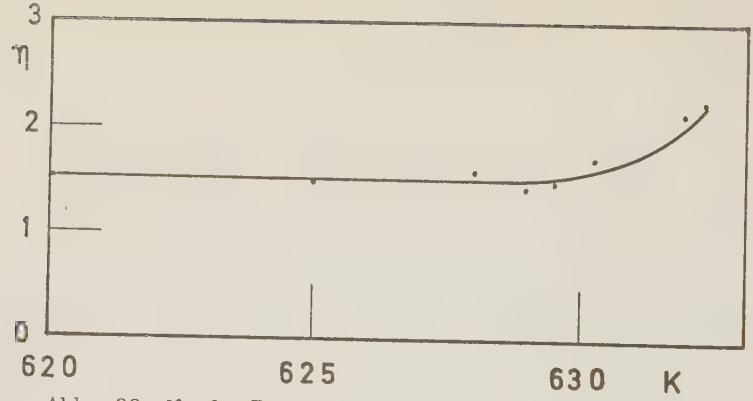


Abb. 32 η als Funktion der Temperatur ($T<T_c$).

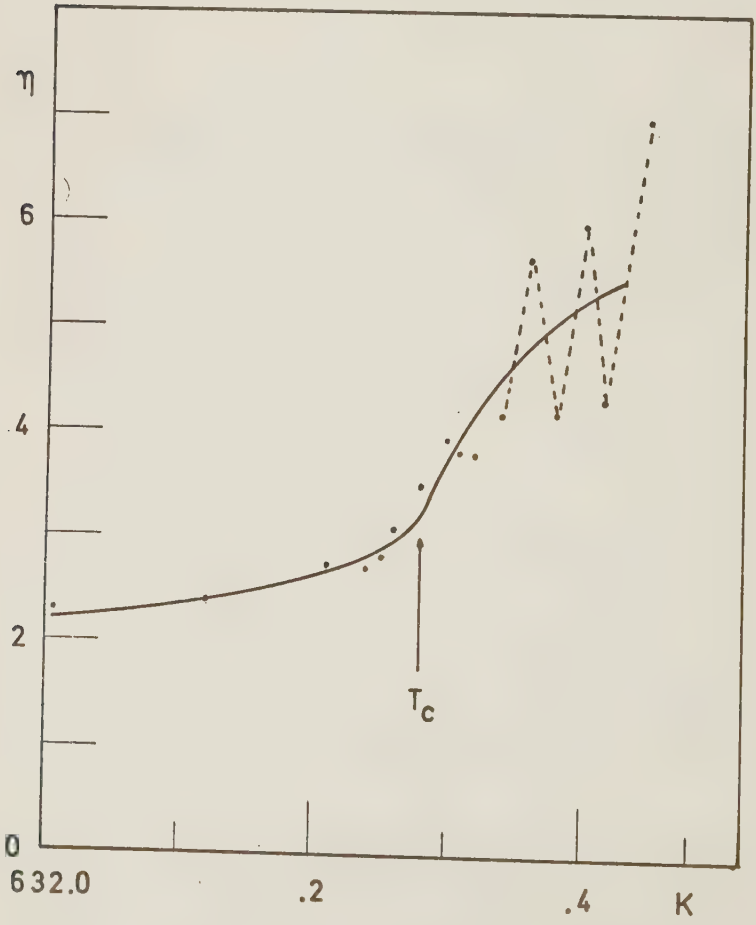


Abb. 33 η in der Umgebung von Tc.

mit λ = die Spinrelaxationsfrequenz

γ = e/m das magnetomechanische Verhältnis

M_s = die spontane Magnetisierung

Unter Verwendung von ((16)) schreibt sich ((21))

$$\eta_I = \frac{27 \cdot \lambda \cdot \varrho}{4\pi \cdot \gamma^2 \cdot d^2 \cdot M_s^2} \qquad ((22))$$

Dann müßte die Verlustüberhöhung durch Spinrelaxation mit $M_s \to 0$ an Tc singulär bzw. maximal werden. Die experimentellen Ergebnisse scheinen dieses Verhalten auch qualitativ zu bestätigen. Da aber über das Verhalten von λ im "kritischen Gebiet" keine Aussagen gemacht werden können, insbesondere für $T > Tc$ kein Ansatz wie Gleichung ((22)) existiert, läßt sich das in Abbildung 33 gezeigte Ergebnis derzeit nicht weiter interpretieren.

7. 2. 2. Der Nachwirkungsverlustanteil (χ''_n)

Nach der klassischen Wirbelstromtheorie (Gl. ((18))) sollten die Wirbelstromgeraden (Abbildung 27 bis 31) für den Grenzfall $\omega \to 0$ alle durch den Ursprung gehen. Wie erstmals JORDAN (3) festgestellt hat, liefert die Extrapolation der Wirbelstromgeraden auf $\omega = 0$ stets einen von Null verschiedenen Wert - den Nachwirkungsverlustanteil χ''_n. Nach einer Theorie von NÉEL (38) existiert in allen ferromagnetischen Werkstoffen ein inneres örtlich und zeitlich fluktuierendes Feld $\langle H_f \rangle$, dessen Größe von der Temperatur und von der Struktur des Materials abhängt. Die Wirkung dieses Feldes erzeugt im Wechselstromversuch eine Zusatzindunktion, die sich sowohl im Real- als auch im Imaginär-teil der komplexen Suszeptibilität bemerkbar macht. Die Erhöhung des Imaginärteils χ'' um χ''_n ist als JORDAN'scher Nachwirkungsverlust bekannt. Über die Temperaturabhängigkeit des NÉEL'schen Schwankungsfeldes im Curiebereich liegen bis heute keine Aussagen vor. Es ist aber plausibel, daß $\langle H_f \rangle$ im kritischen Bereich, also dem Gebiet starker thermischer Fluktuationen der lokalen Magnetisierung maximal wird.

Existieren ferner in einer ε-Umgebung von Tc nach Rechnungen von STIERSTADT und STEIGENBERGER (38) superparamagnetische Domänen mit Ummantisierungszeiten von 10^{-3} sec. bis zu einigen Sekunden, dann muß die Größe χ''_n diese Ummanetisierungsverluste enthalten und an der Stelle $T \cong Tc$ maximal werden. Die Abbildung 34 und 35 zeigen die experimentellen Ergebnisse.

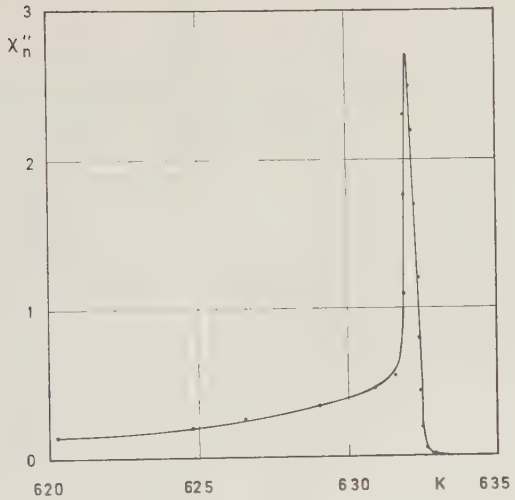


Abb. 34 Temperaturabhängigkeit des Nachwirkungsverlustanteils χ''_n nahe Tc.

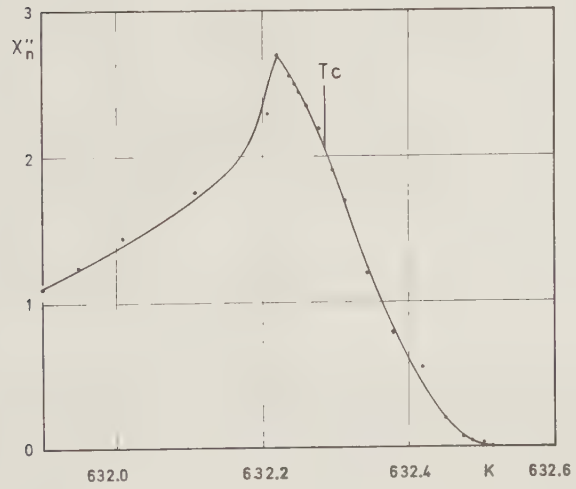


Abb. 35 Vergrößerter Ausschnitt aus Abbildung 34.

Nach Abbildung 35 liegt das χ''_n-Maximum etwa an der gleichen Stelle, die für die log-log-Auswertung in Abbildung 20 als Curiepunkt ermittelt wurde.

1. log-log-Auswertung in Abb. 20: $T_c = (632.28 \pm 0.02)$ K
2. χ''_n-Maximum (aus Meßpunkten in der Umgebung des Maximums gemittelt): $T_c = (632.25 \pm 0.03)$ K

Sind diese Ergebnisse an einer reineren Probe reproduzierbar, so wäre damit ein neues Verfahren zur Tc-Bestimmung gewonnen, was. z.B. für die γ-Ermittlung wichtig wäre. Statt der bisher meist indirekten Verfahren der Tc-Bestimmung (vergl. 6. 3.) wäre Tc dann durch M e s s u n g der Nachwirkungsverluste (χ''_n) gegeben.

Um die Theorie von NÉEL (38) mit dem Experiment besser vergleichen zu können, wurde neben χ''_n noch der Nachwirkungsverlustwinkel $\operatorname{tg}\delta_n$ betrachtet. Allgemein ist der Verlustwinkel definiert als

$$\operatorname{tg}\delta = \frac{4\pi \cdot \chi''}{4\pi \cdot \chi' + 1} \qquad ((23))$$

Abbildung 36 zeigt $\operatorname{tg}\delta(\omega)$ für die verwendeten Temperaturen. Wieder ergeben sich Geraden, deren Extrapolation auf $\omega = 0$ den Nachwirkungsverlustwinkel $\operatorname{tg}\delta_n$ liefert.

Abbildung 37 zeigt $\operatorname{tg}\delta_n$ als Funktion von T. Das Maximum

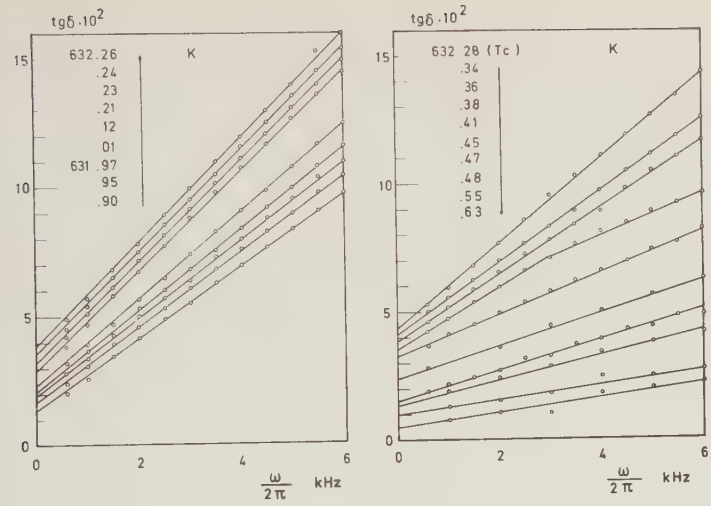


Abb. 36 tg $\delta(\omega)$ als Funktion von $\omega/2\pi$;

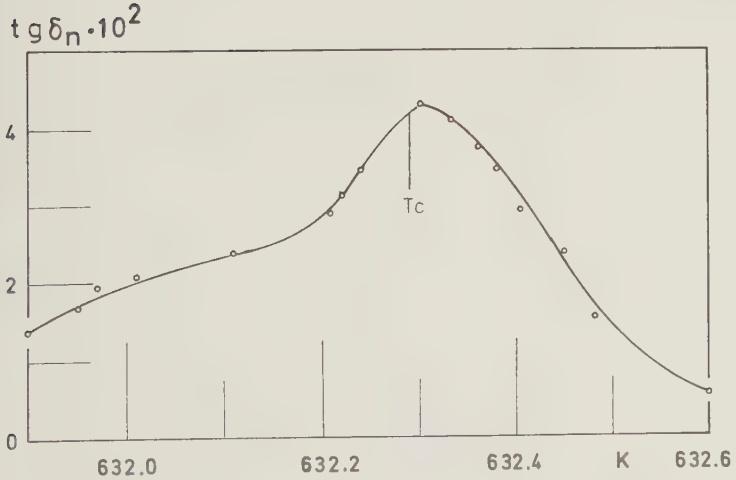


Abb. 37 Der JORDAN'sche Nachwirkungsverlust-winkel tg δ_n als Funktion der Temperatur in der Umgebung von Tc = 632.28 K.

liegt bei einer Temperatur von:

3. $tg\,\delta_n$ - Maximum $\qquad\qquad$ Tc = 632.3(0) K.

Dies ist in guter Übereinstimmung mit den Tc-Werten nach 1. und 2., obwohl weder χ' noch χ'' als Superposition von ferromagnetischem Anteil und dem Anteil des Paraprozesses bei dieser so ermittelten Temperatur ihre Maxima erreichen (siehe Abbildung 15).

Nach NÉEL gilt:

$\langle H_f \rangle \propto S_v$, mit S_v der "Konstanten bzw. der Amplitude des Schwankungsfeldes".

In einer Arbeit von STOLL (40) wird der Zusammenhang zwischen S_v und dem JORDAN'schen Nachwirkungsverlustwinkel δ_n gezeigt:

$$tg\,\delta_n = \frac{2\gamma \cdot \pi \cdot S_v}{\mu_a} \qquad ((23))$$

Die Größe S_v hat die Einheit einer Feldstärke und ist nach den theoretischen Untersuchungen von NÉEL (41) eine Materialkonstante, die im wesentlichen von der Temperatur und den irreversiblen Magnetisierungsprozessen abhängt. Ferner ist S_v in erster Näherung unabhängig von der Feldstärke und Frequenz des angelegten Wechselfeldes.

Bei der Messung der komplexen Suszeptibilität wurde Rayleigh-Verhalten nachgewiesen (vergl. 4. 6.). Dann gilt nach KNELLER (34)

$$\gamma = (3\pi^2\chi'')/\tilde{H} \qquad (\gamma\text{: Rayleigh-Konstante}).$$

Für $\omega \to 0$ wird $\chi''(0) = \chi''_n$ und ((23)) geht über in:

$$\operatorname{tg}\delta_n = \frac{6\pi^3\chi''_n\, S_v}{(4\pi\chi_a + 1)\cdot\tilde{H}} \qquad ((24))$$

Nach 7. 2. 3. und Abbildung 39 läßt sich die Temperaturabhängigkeit von $\chi''_n(T)$ ebenso wie die von $\chi'(T) \simeq \chi_a(T)$ in der Form schreiben:

$$\chi''_n(\varepsilon) = \chi''_{n,o}\cdot\varepsilon^{-\gamma} \qquad ((25))$$

und $\chi'(\varepsilon) = \chi'_o\cdot\varepsilon^{-\gamma}$, für $T > Tc$.

($\chi''_{n,o}$ und χ'_o sind die χ''_n, χ'-Werte für $\varepsilon^{-\gamma} = 1$ bzw. $T = 2\cdot Tc$.

Wenn $4\pi\chi' \gg 1$ ist, geht ((24)) nach Einsetzen von ((25)) über in ((26)):

$$\operatorname{tg}\delta_n(\varepsilon) = \frac{3\pi^2\cdot\chi''_{n,o}\cdot S_v(\varepsilon)}{2\cdot\chi'_o\cdot\tilde{H}} \qquad ((26))$$

Aus ((26)) zusammen mit ((25)) folgt dann, daß die Temperaturabhängigkeit von S_v allein durch die Temperaturabhängigkeit von $\operatorname{tg}\delta_n$ gegeben ist.

Die Koeffizienten $\chi''_{n,o}$, χ'_o wurden aus den experimentellen Werten der Abbildung 20 und 39 zusammen mit ((25)) ermittelt.

Es folgt:

$$\chi''_{n,o} \approx 0.2 \cdot 10^{-5}$$

$$\chi'_o \approx 0.6 \cdot 10^{-4}$$

Dann kann mit $\tilde{H}$ = 5 mOe und den $tg\delta_n$-Werten aus Abbildung 37 die Temperaturabhängigkeit des NÉEL'schen Schwankungsfeldes S_v angeschrieben werden:

$$S_v(\varepsilon) = tg\,\delta_n(\varepsilon) \cdot 10 \ [mOe] \quad \text{für } 4 \cdot 10^{-5} \leq \varepsilon \leq 3 \cdot 10^{-4}.$$

(Vergl. 7. 2. 3.)

Die $tg\delta_n$-Werte von Abbildung 37 liegen in der Größenordnung von 10^{-2} und damit wird $S_v \approx 100$ µOe.

STIERSTADT und Mitarbeiter (41) haben S_v (T) von 77 K bis nahe Tc an verschiedenen polykristallinen Nickel-S - Proben magnetometrisch gemessen. Es ergibt sich ein extrapolierter Wert von $S_v \approx 200$ µOe an der Stelle Tc - T ≈ 10 Grad. (Dabei wurden die Meßergebnisse der Probe benutzt, die mit Hc = 1.65 Oe (Vergl. Tabelle 1) meiner Probe am ähnlichsten war.) Das eigene Ergebnis ($S_v \approx 100$ µOe) liegt in der gleichen Größenordnung.

Gelingt es, die Meßgenauigkeit vor allem für χ'' zu steigern und für die Auswertung nach Ziffer 6. 4. eine verbesserte theoretische Grundlage zu finden, so ist es nach ((24))

möglich, S_v (T) auch für T<Tc zu bestimmen. Dies ist eine sehr interessante Fragestellung. Hat nämlich S_v an der Stelle T≈Tc ein Maximum, wie es Abbildung 37 vermuten läßt, dann muß für T<Tc, S_v (T) durch ein Minimum gehen. Denn für Temperaturen wesentlich unterhalb von Tc (ca. 50 - 100 Grad) steigt S_v (T) mit abnehmender Temperatur zu größeren Werten hin (mOe-Bereich) an, wie es die Messungen von STIERSTADT (41) zeigen.

Die Abbildung 38 zeigt als vorläufiges Ergebnis $tg\delta_n$ (T) für höhere (T > Tc) und tiefere (T ≪ Tc) Temperaturen.

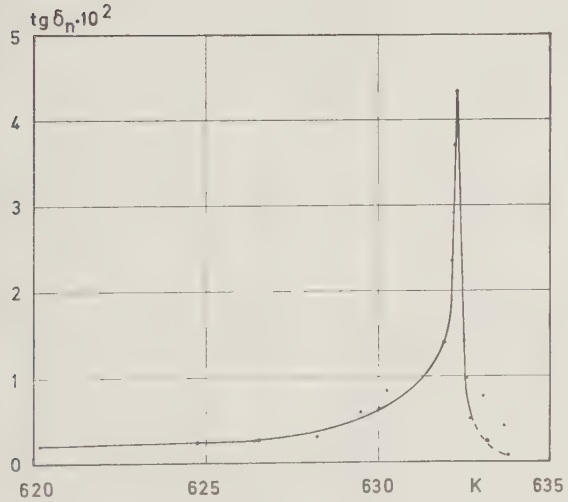


Abb. 38 $tg\delta_n$ als Funktion der Temperatur.

Vergleicht man Abbildung 38 mit Abbildung 34, so folgt, daß $tg\delta_n$ (T) und χ''_n (T) qualitativ dasselbe Temperaturverhalten haben.

7. 2. 3. Die ε -Abhängigkeit von χ''_n

Experimentell ergibt sich für den Imaginärteil (χ'') als Funktion der Meßfrequenz bei T = const., bzw. ε = const. aus ((19)) und 7. 2. 2.:

$$\chi''(\omega) = \chi_a \omega \tau_w \eta + \chi''_n$$

Für jede benutzte Frequenz ω = const. wurde nachgewiesen (vergl. 6. 3. und Abbildung 20),

$$\chi''(\varepsilon) = \chi''_o \cdot \varepsilon^{-\gamma} \qquad T>Tc.$$

Dann muß gelten: $\chi''_n(\varepsilon) = \chi''_{n,o} \cdot \varepsilon^{-\gamma}$, wie in 7. 2. 2. und ((25)) vorausgesetzt wurde. Abbildung 39 zeigt das Ergebnis der Auswertung.

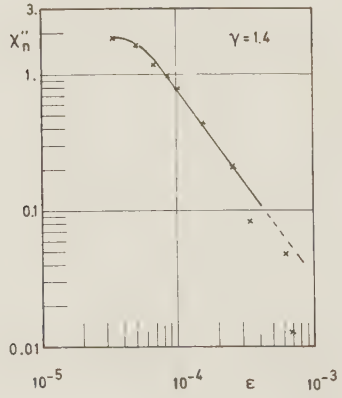


Abb. 39 Doppelt logarithmische Auftragung von χ''_n als Funktion von ε.

Analog wie für χ' und χ'' erhält man einen kritischen Exponenten $\gamma = 1.4$ im Bereich von $4 \cdot 10^{-5} \leq \varepsilon \leq 3 \cdot 10^{-4}$.

Eine weiterführende Auswertung war wegen der mangelnden Meßgenauigkeit für χ'' nicht möglich (vergl. 6. 3. und 6. 4. 3.).

7. 3. Der Realteil als Funktion der Frequenz

7. 3. 1. Experimentelle Ausgangssituation

Wie in Abbildung 19 an zwei Beispielen gezeigt und in Ziffer 6. 1. erwähnt wurde, nimmt der Realteil (χ') der komplexen Suszeptibilität mit steigender Frequenz schwach ab. Um dieses Frequenzverhalten für den erfaßten Temperaturbereich genauer untersuchen zu können, wurden zwei verschiedene Normierungen verwendet:

Alle χ'-Werte wurden auf den höchsten jemals gemessenen Wert $\chi'_{max} = 78.41$ normiert. Die Abbildungen (Abbildung 40 und Abbildung 41) zeigen das Ergebnis. Die Parametertemperaturen sind durch laufende Nummern gekennzeichnet. (Tabelle 8 in Abbildung 40.) Für Temperaturen $T \ll Tc$ ist keine Frequenzabhängigkeit innerhalb der Meßgenauigkeit feststellbar. Bei Annäherung an Tc wird die Frequenzabhängigkeit stärker und nimmt nach Überschreiten von Tc (Nr. 13) allmählich wieder ab. Es ergibt sich, daß eine merkliche

Abb. 40

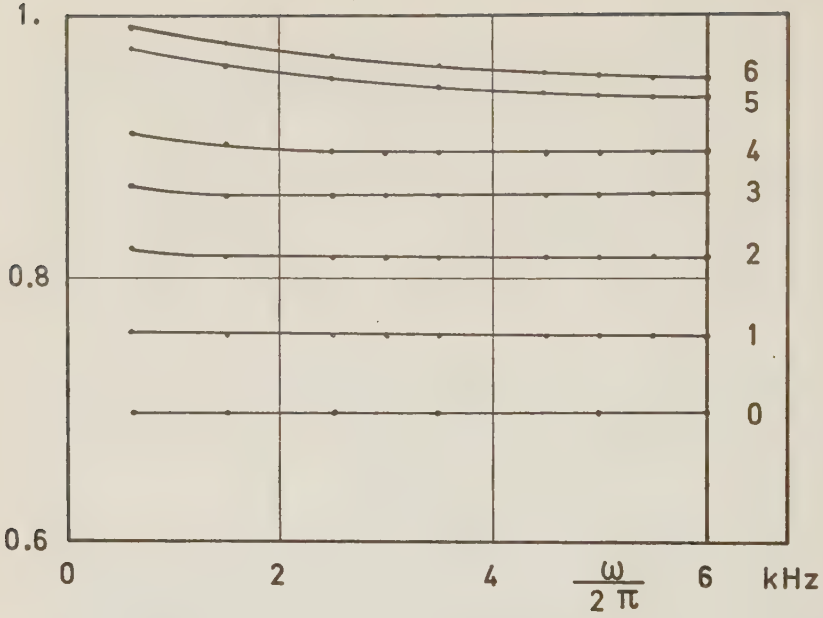


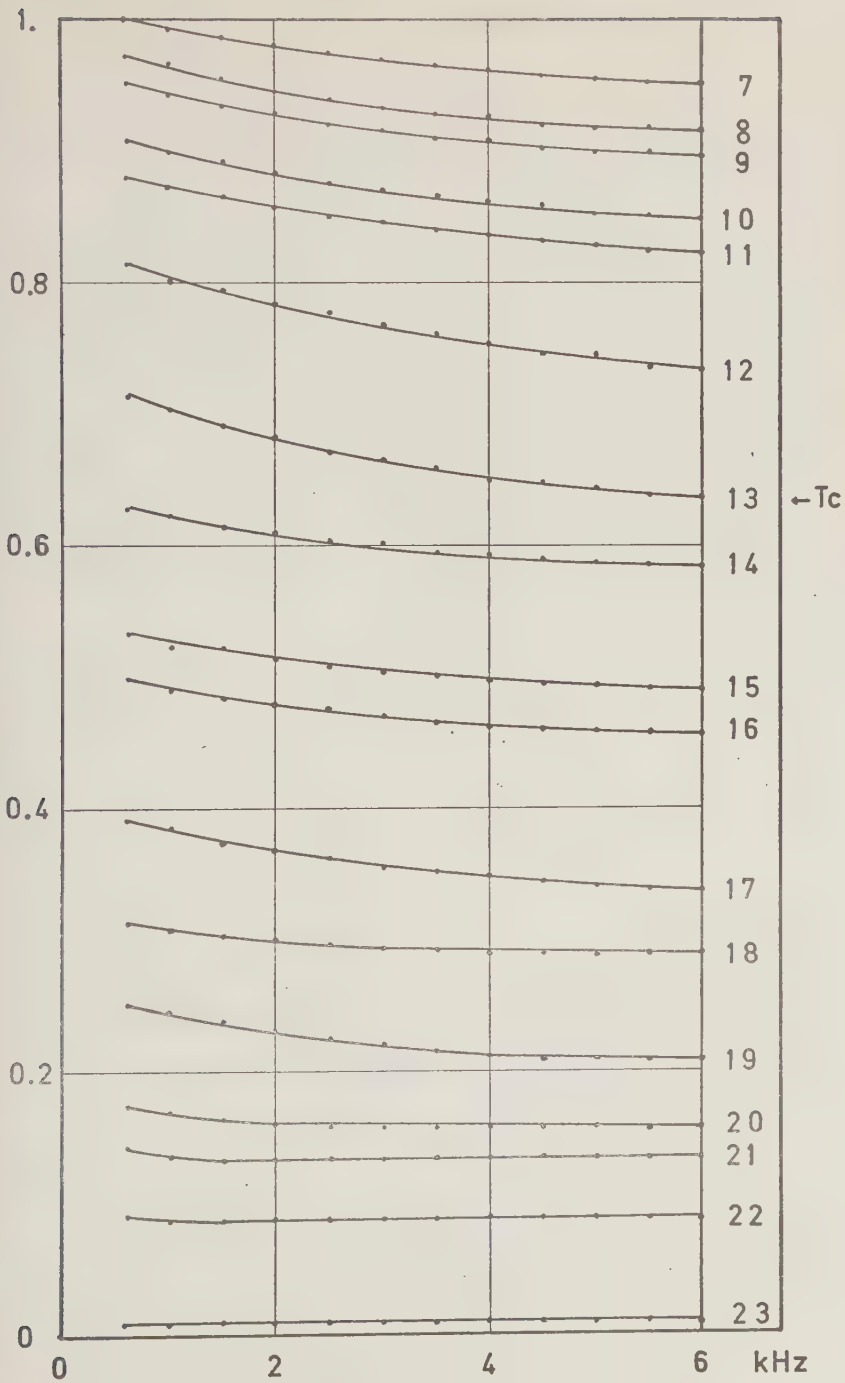
Abb. 40 Der normierte Realteil χ'/χ'_{max} als Funktion der Frequenz und T = const. (χ'_{max} = 78.41).

Tabelle 8

lfd. Nr.	Temperatur K
0	616.36
1	620.16
2	628.16
3	629.45
4	630.23
5	631.90
6	632.01
7	.12
8	.21
9	.22
10	.23
11	.24
12	.26
13	.28(Tc)
14	.30
15	.31
16	.32
17	.34
18	.36
19	.38
20	.41
21	.42
22	.45
23	.47

Für Zimmertemperatur (χ'_z) betrug das Verhältnis χ'_z/χ'_{max} = 0.178.

Abb. 41 Analog wie Abbildung 40



Frequenzabhängigkeit von χ' nur im Temperaturintervall $(Tc - T) = 2.05\ K \leq Tc \leq (T - Tc) = 0.126\ K$ bzw. $-3.34 \cdot 10^{-3} \leq (T - Tc)/Tc \leq 2 \cdot 10^{-4}$, feststellbar war.

Um dieses Frequenzverhalten noch etwas deutlicher hervortreten zu lassen, wurde eine weitere Normierungsmöglichkeit ausgenützt. Die $\chi'(\omega)$-Kurven wurden alle auf ihren eigenen jeweiligen Maximalwert, der immer an der Stelle $\omega/2\pi = 0.6$ kHz liegt, normiert. Die Kurvenscharen beginnen also alle an der Stelle 0.6 kHz mit 1 und zeigen den monotonen Abfall mit steigender Meßfrequenz.

Diese Normierung hat den Vorteil, daß die "relative Suszeptibilitätsabnahme"

$$\frac{\chi'(0.6\ \text{kHz}) - \chi'(\omega)}{\chi'(0.6\ \text{kHz})} = \frac{\Delta\chi'_r}{\chi'(0.6)} \qquad ((27))$$

für jede Frequenz zwischen den Grenzen $0.6 \leq \omega/2\pi \leq 6.0$ kHz sofort abgelesen werden kann. Die nächsten Abbildungen (Abbildung 42, 43, 44) zeigen die Ergebnisse. Die relative Suszeptibilitätsabnahme lag dabei im Intervall

$$0 \leq \Delta\chi'_r/\chi'(0.6) \leq 0.17.$$

(Bei der Kurve T = 632.36 K hat sich offenbar während der Messung die Temperatur geändert!)

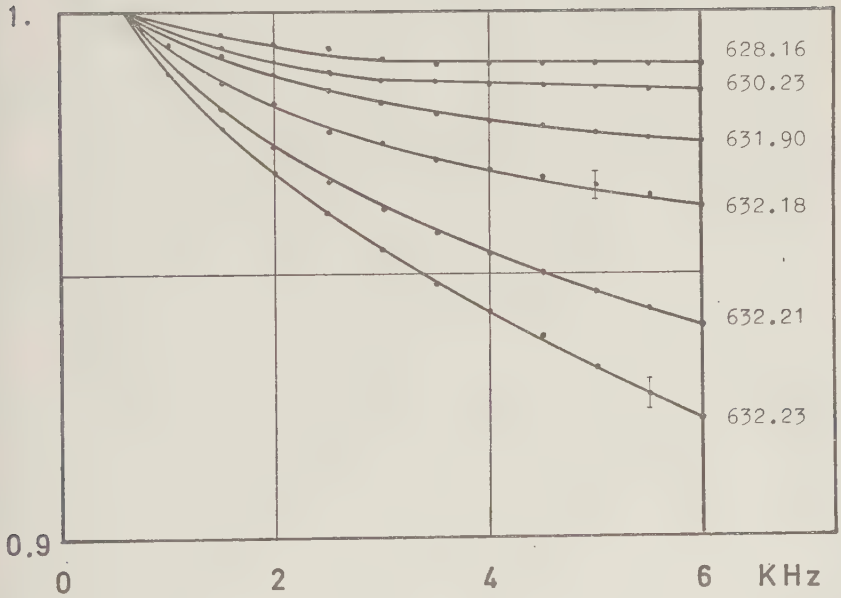


Abb. 42 Der normierte Realteil $\chi'/\chi'_{0.6}$ als Funktion der Frequenz und T = const. Jede $\chi'(\omega)$ - Kurve wurde auf ihren eigenen Maximalwert, der immer an der Stelle $\omega/2\pi$ = 0.6 kHz lag, normiert.

Neben jeder Kurve ist die zugehörige Temperatur in K angegeben.

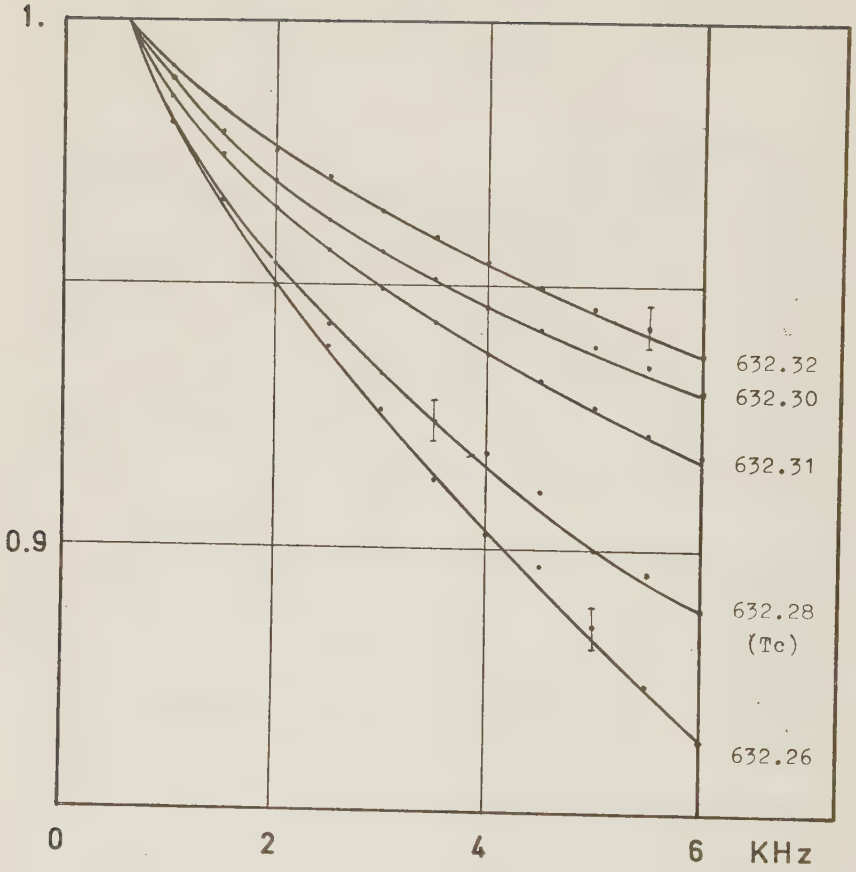


Abb. 43 Analog wie Abbildung 42

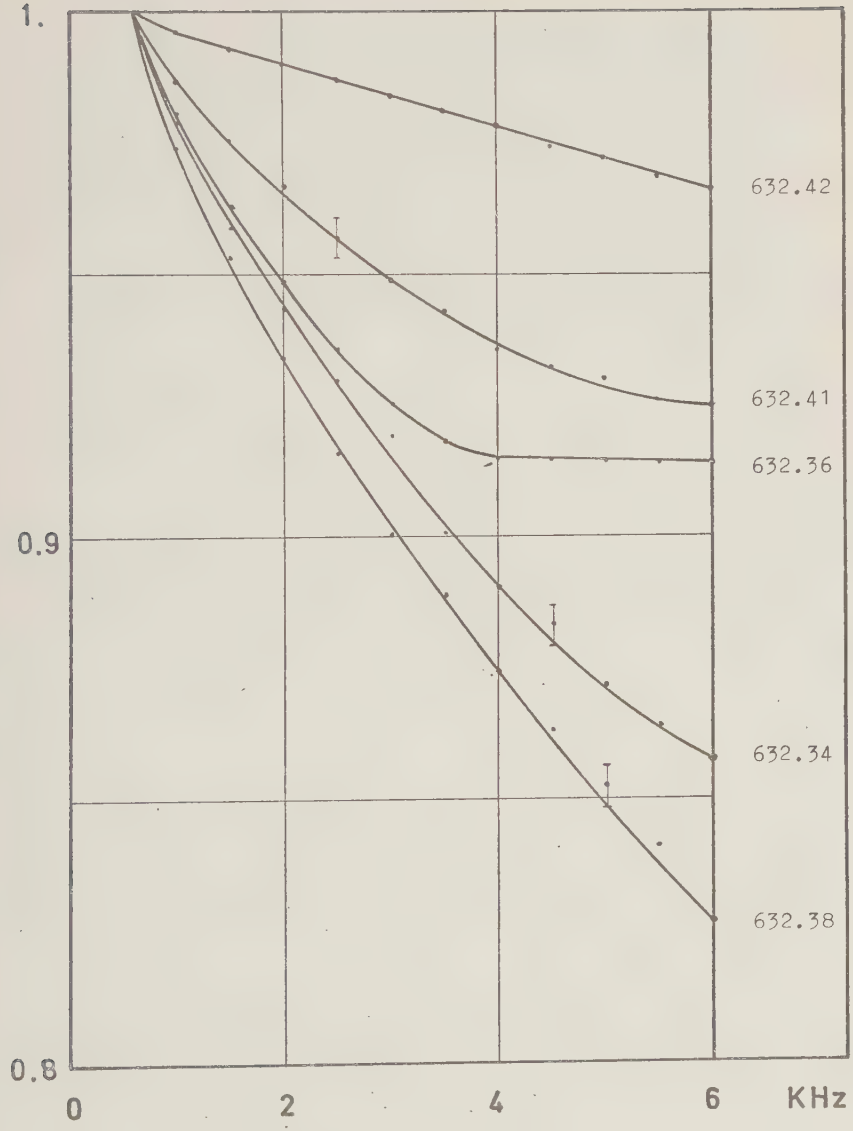


Abb. 44 Analog wie Abbildung 42

7. 3. 2. Theoretischer Ansatz für χ'

Nach dem Wirbelstromansatz in Gleichung ((15)) kann die "relative Suszeptibilitätsabnahme" etwa $2^{o}/oo$ betragen, gemessen wurden aber bis zu 17% (vergl. die Kurve für 632.38 K in Abbildung 44). FELDKELLER gibt in seinem Buch "Theorie der Spulen und Übertrager" eine Beziehung für die Abnahme des Realteils der Suszeptibilität mit steigender Frequenz,

$$\chi'(\omega) = \chi_a - \frac{2}{\pi} \cdot \left(\ln \left(\frac{\omega}{\omega_m} \right) \cdot \chi''_n \right) \qquad ((28))$$

auf Grund der JORDAN-Nachwirkung an. Die Größe ω_m bedeutet dabei eine mittlere Normierungsfrequenz und ist definiert durch

$$\omega_m = \frac{1}{\sqrt{t_\mu \cdot t_\gamma}} \approx 10 \text{ sec}^{-1},$$

mit t_γ der minimalen Zeitkonstanten (Größenordnung 10^{-10} sec), und t_μ der maximalen Zeitkonstanten (Größenordnung 10^{8} sec) der JORDAN-Nachwirkung. Nach FELDKELLER (42) hängt die obere Grenze mit der Koezitivfeldstärke (Hc) des betreffenden Materials zusammen (je kleiner Hc, desto kleiner t_μ), die untere Grenze mit der höchsten Frequenz der fluktuierenden NÉEL'schen Felder.

Aus dem Ansatz FELDKELLERS folgt:

$$\chi' = \chi_a - \frac{2}{\pi} \cdot y \cdot \chi''_n, \text{ mit } y = \ln \left(\frac{\omega}{\omega_m} \right). \qquad ((29))$$

und $\frac{\partial \chi'}{\partial y} = \frac{\Delta \chi'}{\Delta y} = \frac{2}{\pi} \cdot \chi''_n.$

Normiert man die Steigungen der $\chi'(y)$-Kurven auf den Wert $\chi'(0.6 \text{ kHz}) \simeq \chi_a$ (vergl. 6. 3.), so erhält man:

$$\frac{\Delta \chi'}{\chi'(0.6)} \cdot \frac{1}{\Delta y} = \frac{2}{\pi} \operatorname{tg} \delta_n \qquad ((30))$$

$$\Delta y = \ln \left(\frac{2\pi \cdot 6.0}{\omega_m} \right) - \ln \left(\frac{2\pi \cdot 0.6}{\omega_m} \right) = \ln (10),$$

d. h. Δy ist unabhängig von der Normierungsfrequenz ω_m. Nach Gleichung ((30)) ist die "relative Suszeptibilitätsabnahme" ((27)) dem JORDAN'schen Verlustwinkel $\operatorname{tg} \delta_n$ proportional. (Experimenteller Beweis s. Tabelle 9.)

Um den Ansatz FELDKELLERs ((30)) experimentell zu prüfen, wurden die normierten Meßfrequenzen- $\omega [\text{kHz}] / (2\pi \cdot 0.6 [\text{kHz}])$ - logarithmisch gegen den normierten Realteil - nach Abbildung 42 bis 44 aufgetragen. Als Ergebnis liefern die Abbildungen 45 bis 48 stückweise Geraden. Für Frequenzen $\omega/2\pi > 2.0....3.0$ kHz zeigen diese Geraden einen schwachen Knick zur Frequenzachse hin. Die maximale Abweichung vom linearen Verlauf ist

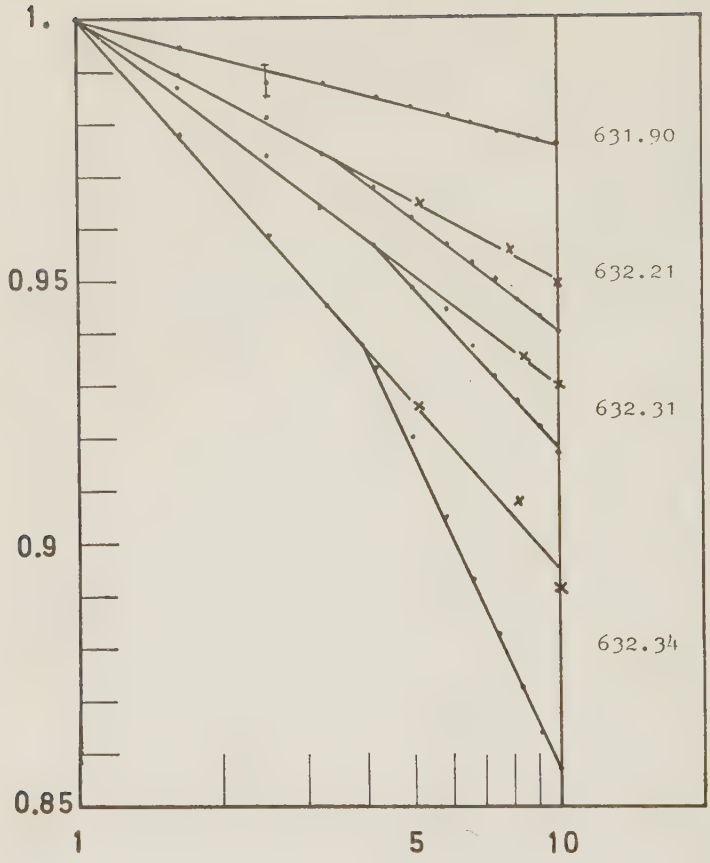


Abb. 45 Der noermierte Realteil $\chi'(\omega)/\chi'(0.6)$ - nach Abbildung 42 bis 44 - aufgetragen gegen den Logarithmus der normierten Frequenz $(\omega[\mathrm{kHz}]/(2\pi \cdot 0.6\,[\mathrm{kHz}])$.

Zu Abb. 45 - 48: Die Punkte (•) stellen die Meßwerte nach Abbildung 42 - 44 dar. Die schrägen Kreuze (x) sind einige nach ((31)) korrigierte Meßwerte. Diese Korrektur war nur für $\omega/2\pi \geq 2.5$ kHz erforderlich.

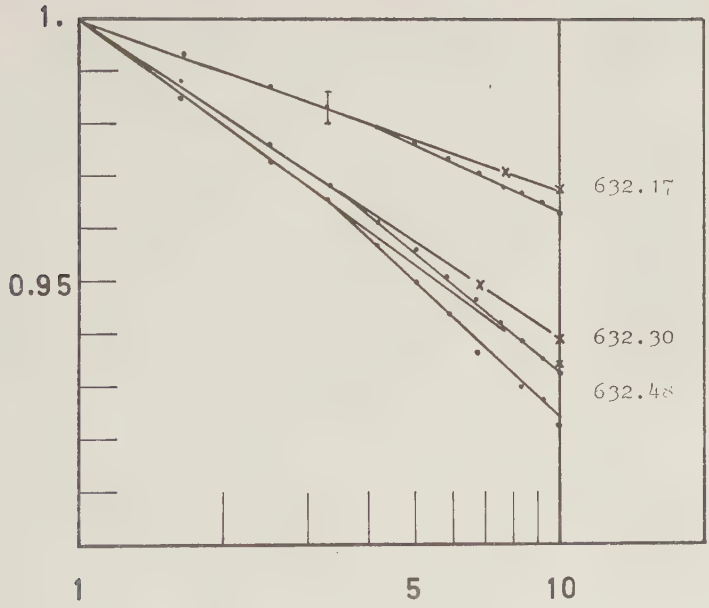


Abb. 46 Analog wie Abbildung 45

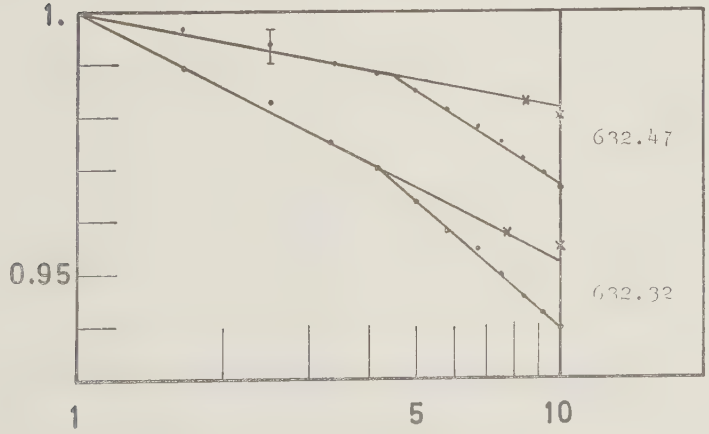


Abb. 47 Analog wie Abb. 45

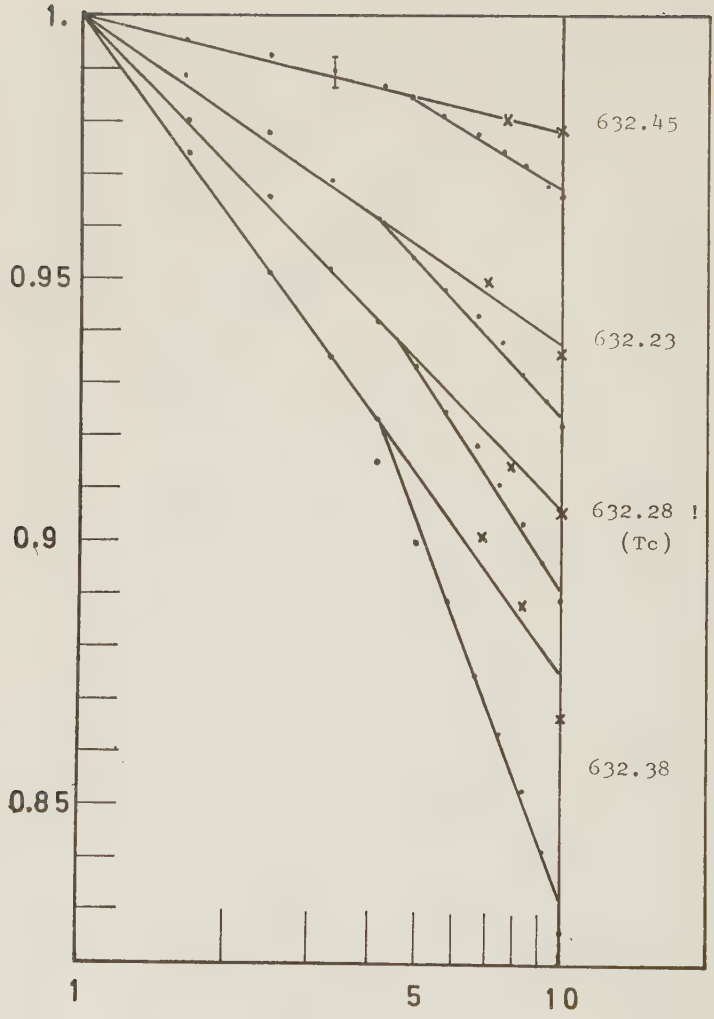


Abb. 48 Analog wie Abbildung 45

$$(\chi'(\text{extrapoliert}) - \chi'(\text{gemessen}))/\chi'_{0.6} = 0.043,$$

an der Stelle

$$\omega/2\pi = 6.0 \text{ kHz (entsprechend "10" in Abb. 45 - 48).}$$

Um diese zwar kleine aber systematische Abweichung vom linearen Verlauf zu erklären, wurde die in Gleichung ((17)) Ziffer 7. 2. 1. verwandte Näherung jetzt aufgegeben. Nach dem Relaxationssatz für r e i n e Wirbelstromdämpfung war der Realteil - $\chi'(\omega)$ - gegeben durch

$$\chi'(\omega) = \chi_a/\cdot(1 + \omega^2 \cdot \tau_{gem}^2) \quad \text{nach ((15)).}$$

($\tau_{gem} = \tau_w \cdot \eta$, vergl. ((19)) in 7. 2. 1.)

Dann folgt als Korrektur für die normierte Suszeptibilität:

$$\left(\frac{\chi'(\omega)}{\chi'_{0.6}}\right)_{\text{korr.}} = \frac{(1 + \omega^2 \cdot \tau_{gem}^2) \cdot \chi'_{(\omega)}}{\chi'_{0.6}} \qquad ((31))$$

Die so korrigierten Meßpunkte sind in den Abbildungen 45 bis 48 als schräge Kreuze eingetragen.

Wurde die Wickelkapazität der Probe nach 2. 3. 2. zu groß bestimmt, so ist die wahre Induktivität und damit χ' etwas zu klein. Dies würde ebenfalls für $\omega > 3.0$ kHz zu einem Abknicken der Geraden in Abbildung 45 bis 48 beitragen.

Nach der Elimination des Wirbelstromverlustes kann der JORDAN'sche Verlustwinkel nach ((30)) aus den Steigungen der Geraden ermittelt werden. Tabelle 9 bringt den Vergleich zwischen den aus Real- bzw. Imaginärteil der komplexen Suszeptibilität gewonnenen Nachwirkungsverlustwinkel $(\mathrm{tg}\,\delta_n)'$ bzw. $(\mathrm{tg}\,\delta_n)''$. Die Werte liegen immerhin in derselben Größenordnung. Eine bessere Übereinstimmung kann nicht erwartet werden, da sich zu den Meßfehlern von χ'' und χ', die graphischen Fehler sowohl bei der Extrapolation der $\mathrm{tg}\,\delta$-Geraden (vergl. 7. 2. 2. und Abbildung 36), als auch bei der Bestimmung der Steigungen addieren.

In der Abbildung 49 sind die $(\mathrm{tg}\,\delta_n)'$-Werte nach Tabelle 9 als Funktion der Temperatur aufgetragen.

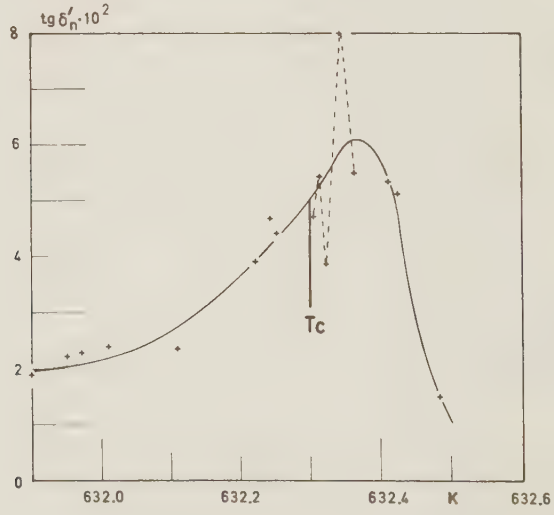


Abb. 49 $\mathrm{tg}\,\delta_n = (\mathrm{tg}\,\delta_n)'$ als Funktion der Temperatur. Der gleiche Maßstab wie in Abb. 37.
$T_c(\mathrm{tg}\,\delta_n''\text{-Max.}) = 632.3(0)$ K.

Tabelle 9

T [K]	$(tg\delta_n)'' \cdot 10^2$	$(tg\delta_n)' \cdot 10^2$
631.90	1.40	1.92
.95	1.70	2.16
.97	2.00	2.31
632.01	2.10	2.40
.12	2.35	2.36
.17	2.60	2.62
.21	2.90	3.94
.22	3.22	3.95
.23	3.50	4.70
.24	3.62	4.42
.26	3.85	6.47
.28 ($=T_c$)	4.20	7.18
.30	4.35	4.71
.31	4.05	5.40
.32	4.00	3.70
.34	3.90	8.10
.36	3.75	5.47
.38	3.50	9.50
.41	2.65	5.63
.42	2.51	5.18
.47	1.50	1.47
.54	0.98	nicht mehr
.63	0.48	meßbar

Der Vergleich zwischen Abbildung 37 und Abbildung 49 zeigt näherungsweise Übereinstimmung. Die Bestimmung der Steigungen aus Abbildung 45 - 48 war etwas ungenauer als die Extrapolation in Abbildung 36. Daher ist die Streuung der Werte in Abbildung 49 größer als die der Werte in Abbildung 37.

7. 3. 3. Die Dispersionsrelationen nach KRAMERS-KRONIG

Die KRAMERS-KRONIG Relationen verlangen, daß Real- und Imaginärteil der komplexen "Response-Funktion"eines Systems ineinander transformierbar sein müssen. Für den Fall der komplexen Suszeptibilität gilt:

$$\chi'(\omega_1) - \chi'(\infty) = \frac{2}{\pi}\int_0^\infty \frac{\omega\chi''(\omega)}{\omega^2 - \omega_1^2}\,d\omega \qquad ((32))$$

$$\chi''(\omega_1) = -\frac{2}{\pi}\int_0^\infty \frac{\omega_1[\chi'(\omega) - \chi'(\infty)]}{\omega^2 - \omega_1^2}\,d\omega \qquad ((33))$$

wobei $\chi'(\infty)$ die frequenzunabhängige Komponente von $\chi'(\omega)$ und ω_1 die Resonanzstelle bedeuten sollen. Im Folgenden soll versucht werden, mit ((32)) den Ansatz FELDKELLERs ((28)) zu verifizieren.

Nach der Theorie von NÉEL (38) ist die JORDAN-Nachwirkung in weiten Grenzen (vergl. ((28)), $1/t_\mu \leq \omega/2\pi \leq 1/t_\gamma$) unabhängig von der Frequenz. In Übereinstimmung damit konnten

FELDKELLER und KOLB (43) an Siferrit 2000 Tr im Frequenzgebiet von 4 Hz bis 80 kHz keine Frequenzabhängigkeit der JORDAN-Nachwirkung finden. Dagegen zeigten Messungen an ausgewählten Blechen von FELDKELLER und SORGER (42) eine Begrenzung der JORDAN-Nachwirkung sowohl nach tiefen, als auch nach hohen Frequenzen. Allerdings reichte die Meßgenauigkeit nicht aus, um eine untere bzw. obere Grenzfrequenz der JORDAN-Nachwirkung zahlenmäßig festzulegen und deren Abhängigkeit von Werkstoff, Suszeptibilität oder Blechdicke zu bestimmen. STOLL (40) ist es gelungen, durch Messungen an Ni - Fe Bandkernen mit einer neuen Methode eine untere Frequenzgrenze, die von der Blechdicke d abhängt, festzulegen. Diese empirisch gefundene Beziehung für die untere Grenzfrequenz f_u lautet:

$$f_u \left[\mathrm{Hz}\right] = 1 \cdot d \left[\mu\mathrm{m}\right] \qquad ((34))$$

(Unsicherheit $\pm$ 1/2 Dekade)

Damit wird für meine Probe f_u = 50 Hz ($\pm$ 1/2 Dekade). Dieser unteren Grenzfrequenz entspräche eine Zeitkonstante $\tau_u = 2 \cdot 10^{-2}$ sec, die größenordnungsmäßig mit der von STEIGENBERGER und STIERSTADT (39) ermittelten Ummagnetisierungszeiten für superparamagnetische Domänen am kritischen Punkt übereinstimmen würde. Nach den Messungen von STOLL (40) ist die JORDAN-Nachwirkung für $\omega/2\pi > f_u$ frequenzunabhängig.

Setzt man tg δ_n und damit χ''_n für $\omega/2\pi \geq 0.6$ kHz als frequenzunabhängige Größen voraus, so schreibt sich ((32)) in der Form:

$$\chi'(\omega_1) - \chi'(\infty) = \frac{2}{\pi}\chi''_n \int_0^\infty \frac{\omega}{\omega^2 - \omega_1^2}\, d\omega \qquad ((35))$$

Für zwei Frequenzen ω_1, ω_2 gilt:

$$\chi'(\omega_1) - \chi'(\omega_2) = \frac{2}{\pi}\chi''_n \left(\int_0^\infty \frac{\omega \cdot d\omega}{\omega^2 - \omega_1^2} - \int_0^\infty \frac{\omega \cdot d\omega}{\omega^2 - \omega_2^2} \right) \qquad ((36))$$

(Die Integrale in ((36)) sind - nach KRAMERS-KRONIG - als Hauptwert-Integrale auszuwerten.)

Daher folgt mit $\omega_1, \omega_2 < \zeta$:

$$\int_0^\zeta \frac{\omega \cdot d\omega}{\omega^2 - \omega_1^2} - \int_0^\zeta \frac{\omega \cdot d\omega}{\omega^2 - \omega_2^2} =$$

$$= \int_0^{\omega_1 - g} + \int_{\omega_1 + g}^{\zeta} - \left(\int_0^{\omega_2 - h} + \int_{\omega_2 + h}^{\zeta} \right) =$$

$$= \frac{1}{2}\Big\{ \ln\left[(\omega_1 - g)^2 - \omega_1^2\right] - \ln\left(-\omega_1^2\right) +$$
$$+ \ln\left(\zeta - \omega_1^2\right) - \ln\left[(\omega_1 + g)^2 - \omega_1^2\right] -$$
$$- \ln\left[(\omega_2 - h)^2 - \omega_2^2\right] + \ln\left(-\omega_2^2\right) -$$
$$- \ln\left[\left(\zeta^2 - \omega_2^2\right) + \ln\left[(\omega_2 + h)^2 - \omega_2^2\right]\right\}$$

$$= \frac{1}{2}\Big\{ \ln\left(\omega_1/\omega_2\right)^2 + \ln\left(\frac{\zeta^2 - \omega_1^2}{\zeta^2 - \omega_2^2}\right) +$$

$$+ \ln\left(\frac{g^2 - 2\omega_1 g}{g^2 + 2\omega_1 g}\right) - \ln\left(\frac{h^2 - 2\omega_2 h}{h^2 + 2\omega_2 h}\right)$$

Für $g \to 0$ und $k \to 0$

$$\lim_{\zeta \to \infty} \left(\int_0^{\zeta} \frac{\omega \cdot d\omega}{\omega^2 - \omega_1^2} - \int_0^{\zeta} \frac{\omega \cdot d\omega}{\omega^2 - \omega_2^2} \right) = \ln\left(\frac{\omega_2}{\omega_1}\right)$$

Mit $\omega_1 = 2\pi \cdot 0.6$ kHz,

$\omega_2 = 2\pi \cdot 6.0$ kHz ergibt sich

$$\chi'(0.6) - \chi'(6.0) = (2/\pi) \cdot \chi_n'' \cdot \ln(10). \qquad ((37))$$

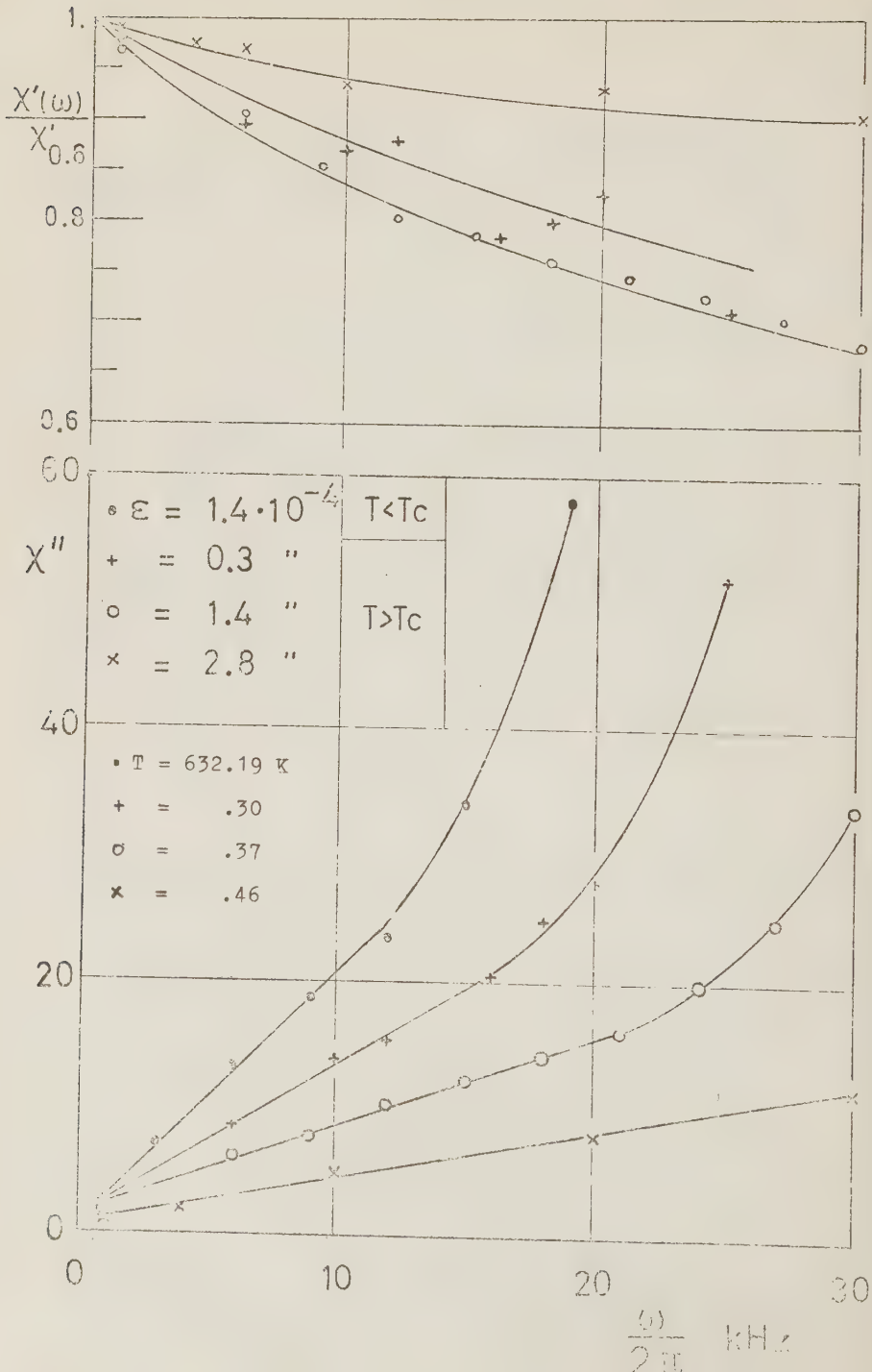
Division von ((37)) durch $\chi'(0.6) \simeq \chi_a$ ergibt ((30)).

Mit der KRAMERS-KRONIG Relation ((35)) kann so der Ansatz FELDKELLERs, der von ((28)) auf ((30)) führt, für reine JORDAN-Relaxation verifiziert werden. Durch Tabelle 9 und die Abbildungen 37 und 49 werden die Voraussetzungen für die Gültigkeit der KRAMERS-KRONIG Relationen experimentell bestätigt.

8. Die Ausdehnung des Frequenzintervalls: Lock-In-Messungen

Experimentell ergab sich, daß vor allem zwei Ursachen für die mangelnde Meßgenauigkeit des Lock-In-Verfahrens verantwortlich sind. Für Frequenzen $\omega/2\pi > 10$ kHz wird die Korrektur hervorgerufen durch die Wickelkapazität, wesentlich. Die Stellengenauigkeit dieser nach Punkt 2. 4. 2. bestimmten Korrekturgröße war für Frequenzen

Abb. 50 Meßergebnisse des Lock-In-Verfahrens



oberhalb 10 kHz nicht mehr ausreichend. Die Komponenten χ' und χ'' der komplexen Suszeptibilität sind der Induktivität L bzw. dem Verlustwiderstand $\tilde{R}$ proportional (vergl. ((7)) in 2. 2. 2.). Für das Lock-In-Verfahren ergab sich:

$$L \propto R_E \cdot \sqrt{1 - x^2}, \quad \tilde{R} \propto x \quad \text{mit} \quad x = U_{Out}/U_{Sig}$$

(Vergl. 2. 3. 3.)

Für $x \to 0$ und $x \to 1$, bzw. $\omega/2\pi > 10$ kHz und $\omega/2\pi < 100$ Hz wird die Induktivität L und damit $\chi'(\omega)$ sehr schlecht bestimmbar. Ferner bestanden die verwendeten Eichdekaden (R_E) nur aus handelsüblichen Widerständen mit einer Genauigkeit von ca. 1%. Abbildung 50 zeigt einige Beispiele für den normierten Realteil $\chi'(\omega)/\chi'(0.6)$ und den Imaginärteil χ'' im Frequenzintervall $0.6 \leq \omega/2\pi \leq 30$ kHz. Während der Imaginärteil noch einigermaßen gut meßbar war, ist die Streuung für $\chi'(\omega)$ beträchtlich. Die "Wirbelstromgeraden" $\chi''(\omega)$ haben für Frequenzen $\omega/2\pi > 12$ kHz eine Aufwärtskrümmung, deren Anfang noch von der Temperatur abhängt. Daraus folgt, daß für Frequenzen oberhalb 12 kHz komplizierte Skineffektkorrekturen nötig sind, um den quantitativen Zusammenhang zwischen der komplexen Suszeptibilität und den Meßgrößen L und $\tilde{R}$ zu gewährleisten. Immerhin zeigen diese mit einem anderen Verfahren gewonnenen Ergebnisse *) gute Übereinstimmung mit den Ergebnissen der MAXWELL-Brücke. In der Verbesserung der Lock-In-Verfahren und damit der Ausdehnung des Frequenzbereiches zu höheren u n d tieferen Frequenzen wird zur Zeit gearbeitet.

*) Vergl. Abb. 50 mit Abb. 28, 42 und 43.

9. Zusammenstellung der Ergebnisse und Vorschläge für weitere Arbeiten

Die Ergebnisse für die im Experiment zur Verfügung stehenden Frequenz- und Temperaturbereiche werden im Folgenden aufgeführt.

ω = const. $\quad T > Tc$:

$$\chi'(\varepsilon) = \chi'_o \cdot \varepsilon^{-\gamma} \qquad 4\cdot10^{-5} \leq \varepsilon \leq 8\cdot10^{-3}$$

$$\chi''(\varepsilon) = \chi''_o \cdot \varepsilon^{-\gamma} \qquad 4\cdot10^{-5} \leq \varepsilon \leq 3\cdot10^{-4}$$

Die Koeffizienten χ'_o bzw. χ''_o wurden aus Abbildung 20 ermittelt.

$$\chi'_o = 6\cdot10^{-5}$$

$$\chi''_o \text{ (6.0 kHz)} = 0.58\cdot10^{-5}$$

$$\chi''_o \text{ (0.6 kHz)} = 0.23\cdot10^{-5}$$

Die Theorie der magnetischen Verluste im Wechselfeld fordert für den Imaginärteil die Aufspaltung in Wirbelstrom- und Nachwirkungsverlust-anteil.

$$\chi'' = \chi_a \omega \cdot \tau_w \cdot \eta + \chi''_n .$$

Der Nachwirkungsverlustanteil χ''_n ist

$\chi''_n(\varepsilon) = \chi''_{n,o} \cdot \varepsilon^{-\gamma}$, $\chi''_{n,o} = 0.2\cdot10^{-5}$ (vergl. 7. 2. 3.)

$4\cdot10^{-5} \leq \varepsilon \leq 3\cdot10^{-4}$.

Der kritische Exponent γ war für χ', χ'' und χ''_n

$\gamma = 1.41 \pm 0.02$, unabhängig von der Meßfrequenz mit $Tc = 632.28 \pm 0.02$ K.

$T < Tc$:

Unter der Voraussetzung, daß sich der ferromagnetische (χ_f) und der Spin-Anteil (χ_p) zur gemessenen Gesamtsuszeptibilität addieren, wurde für χ'_f und χ''_f gefunden:

$$\chi'_f(\varepsilon) \propto \varepsilon^{2\beta - \mu(A)} \qquad 3\cdot10^{-5} \leq \varepsilon \leq 4.2\cdot10^{-4}$$

$$\chi''_f(\varepsilon) \propto \varepsilon^{2\beta - \mu(A)} \qquad " \quad " \quad "$$

mit dem Gewichtsfaktor A = 1, 1/2, 1/4, 1/5, und einem nach (32) wahrscheinlichsten Wert

$$\bar{\mu}(1/4) = 0.758 \pm 0.07$$

Die log-log Auswertung von χ'_f und χ''_f ergab stückweise Geraden. Wird die Änderung der Steigung dieser Geraden durch die ε-Abhängigkeit des kritischen Exponenten nach ARAJS (21) verursacht, scheint die Existenz eines überwiegenden Anisotropietermes $K_x \propto \varepsilon^{\mu}$ gerechtfertigt. (Vergl. 6. 4. 1. und Abbildung 22 - 25.)

<u>T = const.</u> Aus dem Wirbelstromrelaxationsansatz folgt $\chi''(\omega) = \chi_a \cdot \omega \cdot \tau_w$ in erster Näherung.

Experimentell wurde gefunden:

$\chi''(\omega) = \chi_a \omega \tau_w \eta$, mit $\eta(T)$ der Verlustüberhöhung.

$$\overline{\chi} = \chi_a \frac{1}{(1+\omega^2\tau_w^2\eta^2)} - \frac{2}{\pi}\ln\left(\frac{\omega}{\omega_m}\right)\chi_n'' - i\left(\frac{\chi_a\cdot\omega\tau_w\eta}{1+\omega^2\tau_w^2\eta^2} + \chi_n''\right).$$

Ein neues Meßverfahren (Lock-In Verstärker) zur Erweiterung des Frequenzbereiches und einige vorläufige Ergebnisse (Abbildung 50) wurden vorgestellt. Gute Übereinstimmung mit den Ergebnissen der MAXWELL-Brücke wurde im Intervall $0.6 \leq \omega/2\pi \leq 6.0$ kHz gefunden. Für Frequenzen oberhalb 12 kHz wird χ' sehr schlecht meßbar und die lineare Näherung nach ((18)) für χ'' ist nicht mehr anwendbar.

Vorschläge für weitere Arbeiten.

Bei den Messungen der komplexen Suszeptibilität hat sich der Wirbelstromeinfluß als überwiegender Verlustmechanismus herausgestellt. Eine Variation der Foliendicke d würde Aufschluß über die Wirbelstromanomalie geben (vergl. 7. 2. 1.).

Noch besser wäre es, durch Messung an einem ferromagnetischen Nichtleiter - etwa einem Granat - den Wirbelstromeinfluß auszuschalten. Die Erweiterung des Frequenzintervalles bis zu einigen hundert kHz wäre dann möglich. Untersuchungen an einer Reinstnickelprobe sind in Vorbereitung, um Informationen über eine durch Verunreinigung hervorgerufene Inhomogenität der Curietemperatur zu erhalten.

Wird die komplexe Suszeptibilität zusätzlich noch als Funktion der Wechselfeldamplitude gemessen, so liefert die $\tilde{H}$ - Abhängigkeit des Realteiles neben der

wahren Anfangssuszeptibilität χ_a noch die RAYLEIGH-Konstante γ (vergl. Abbildung 12: γ ergibt sich aus der Steigung der $\tilde{H}$-χ' Geraden). Aus χ_a (T) und γ(T) kann dann nach ((23)) das NÉEL'sche Schwankungsfeld S_v (T) im ganzen Temperaturbereich quantitativ bestimmt werden. Insbesondere kann die am Ende von 7. 2. 2. aufgeworfene Fragestellung geklärt werden.

10. Zusammenfassung

Als Beispiel für einen Phasenübergang zweiter Ordnung wurde in dieser Arbeit das Curie-Gebiet einer polykristallinen Nickel-S Probe untersucht. Meßgröße war die komplexe Suszeptibilität, deren Real- und Imaginärteil als Funktionen der Temperatur und der Frequenz im kHz-Bereich bestimmt wurden.

Temperaturabhängigkeit

Für Temperaturen $T > Tc$ wurde die charakteristische Abhängigkeit der Suszeptibilität von der normierten Temperatur (ε) gemessen, und gute Übereinstimmung mit den theoretischen Ergebnissen für den Wert des kritischen Exponenten (γ) gefunden. Soweit die theoretischen Ansätze und die Meßgenauigkeit es zuließen, wurde für $T < Tc$ die Aufspaltung in ferromagnetischen- und Spin-Anteil vorgenommen. Die Temperaturabhängigkeit des ferromagnetischen Anteils ist durch ein Exponentialgesetz der Form $\chi_f \propto \varepsilon^{2\beta - \mu}$ beschreibbar. Aus μ können Aussagen über die Magnetisierungsprozesse und das wirksame Anisotropieverhalten dicht unterhalb von Tc erhalten werden.

Frequenzabhängigkeit

Die Wirbelstromdämpfung als dominanter Verlustmechanismus im ferromagnetischen Leiter bewirkte ein lineares Ansteigen

des Imaginärteiles mit steigender Meßfrequenz. Die Trennung des Imaginärteiles in Wirbelstrom- und Nachwirkungsverlust-Anteil lieferte die Temperaturabhängigkeit des JORDAN'schen Verlustwinkels ($tg\,\delta_n$) und, mit Einschränkungen, die der Konstanten des NÉEL'schen Schwankungsfeldes (S_v). Die Theorie der JORDAN-Nachwirkung von NÉEL verlangt eine logarithmische Abnahme des Realteiles mit steigender Meßfrequenz. Dies wurde experimentell bestätigt. Aus der Frequenzabhängigkeit des Realteiles erhält man einen zweiten Wert für die Größe ($tg\,\delta_n$). Numerische Übereinstimmung zwischen den aus Real- und Imaginärteil gewonnenen $tg\,\delta_n$-Werten wurde näherungsweise gefunden. Damit wurde ein experimenteller Beweis für die Gültigkeit der Voraussetzungen der KRAMERS-KRONIG Relationen im betrachteten Frequenz-, Feldstärke- und Temperaturintervall erbracht.

Neue Ergebnisse

1. Zum erstenmal wurde der kritische Exponent γ für χ'' und für χ' g l e i c h z e i t i g bestimmt.
2. Erstmalig wurde γ für $H \to 0$ ($H = 5$ mOe) direkt ermittelt. Gute Übereinstimmung mit dem von der Theorie für $H = 0$ geforderten Wert wurde erzielt.
3. Für den ferromagnetischen Anteil der Suszeptibilität wurde ein Exponentialgesetz festgestellt. Aus dem ermittelten Exponenten μ können Aussagen über die Magnetisierungsprozesse und die wirksame Anisotropie dicht unterhalb von Tc gemacht werden.

4. Die JORDAN-Nachwirkung wurde zum erstenmal im kritischen Temperaturbereich bemessen. Die Möglichkeit einer d i r e k t e n Bestimmung von Tc aus diesen Messungen wurde diskutiert.

5. Im Intervall Tc $\pm$ 1 Grad wurde ein langsamer Relaxationsprozeß gefunden. Als Ursache können superparamagnetische Domänene, die durch eine inhomogene Tc-Verteilung entstehen, in Frage kommen.

11. Quellennachweis

(1) V.J. MINKIEWICZ, M.F. COLLINS, R. NATHANS, G. SHIRANE, Phys. Rev. 182, 624 (1969)

(2) W. MARSHALL, R. D. LOWDE, Progr. in Phys., Vol. XXXI, Part 2, 705 (1968)

(3) H. JORDAN, Elektr. Nachrichten. Technik, 1, 7 (1924)

(4) L. van HOVE, Phys. Rev. 93, 268 (1954)

(5) F. OLANDER, M. S. Thesis, Iowa State University (1966)

(6) P. SCHIEMENZ, Diplomarbeit (1963) u. Dissertation, Universität München (1967)

(7) N. HERZUM, Diplomarbeit, Universität München (1966)

(8) G. S. JOYCE, R. G. BOWERS, Proc. Phys. Soc. 89, 776 (1966)

(9) P. J. WOOD, G. S. RUSHBROOK, Phys. Rev. Lett. 17, 307 (1966)

(10) H. E. STANLEY, Phys. Rev. 158, 546 (1967)

(11) G. A. BAKER, H. E. GILBERT, J. EVE, G. S. RUSHPROOKE, Phys. Rev. 164, 800 (1967)

(12) D. JASNOW, M. A. MOORE, M. WORTIS, Phys. Rev. 176, 739 a. 751 (1968)

(13) H. E. STANLEY, T. A. KAPLAN J. appl. Phys. 38, 977 (1967)

(14) J.S. KOUVELL, M.E. FISCHER, Phys. Rev. 136, A 1626 (1964)

(15) S. ARAJS, J. appl. Phys. 36, 1136 (1965)

(16) K. GEISSLER, Zeitschr. f. Natf. 22a, 830 (1967)

(17) J.S. KOUVELL, D.S. RODBELL, Phys. Rev. Lett. 18, 215 (1967)

(18) J.S. KOUVELL, J.B. COMLY, Phys. Rev. Lett. 20, 1237 (1968)

(19) J.E. NOAKES, A. ARROTT, J. appl. Phys. 39, 1235 (1968)

(20) G.M. DRABKIN, E. ZABIDAROV, YA.A. KASMAN, A.I. OKOROKOV, JETP., Lett. 11,3 (1970)

(21) S. ARAYS, B.L. TEHAN, E.E. ANDERSON, A.A. STELMACH, Phys. Stat. Sol. 41, 639 (1970)

(22) N. STUMP, KFA, Berichte der Kernforschungsanlage Jülich, JÜL-602-FN (1967)

(23) K. BINDER, Phys. Stat. Sol, B46, 567 (1971)

(24) L. WUNSCH, Diplomarbeit, Universität München, "in Vorbereitung"

(25) M.TH. REKVELDT, Dissertation Technische Hochschule Delft (1972)

(26) P.C. CRAIG, W.I. GELDBURG, T.A. KITCHENS, J.I. BUDNICK, Phys. Rev. Lett. 19, 1334 (1967)

(27) K.P. BJELOV, "Magnetic Transitions" Consultants Bureau, New York

(28) L.P. KADANOFF, W. GÖTZE, D. HAMBLEIN, R. HECHT, E.A.S. LEWIS, V.V. PALCIAUSKAS, M. RAYL, J. SWIEFT, D. ASPNES, J. KANE, Rev. of Mod. Phys. 39, Vol. 2, 395 (1967)

(29) E. KNELLER, "Beiträge zur Theorie des Ferromagnetismus u. der Magnetisierungskurve v. W. KÖSTER, Springer-Verlag (1956), Berlin,(S. 82-140)

(30) D. G. HOWARD, B.D. DUNLAP, J.G. DASH, Phys. Rev. Lett. 15, 628 (1965)

(31) H.K. BAKKER, M.TH. REKVELDT, J.J. van LOEF, Phys. Lett. (Netherlands) 27A, 69 (1968)

(32) P.C. HOHENBERG, "persönliche Mitteilung"

(33) N. STEIGENBERGER, K. STIERSTADT, Phys. Stat. Sol. (a) 12, (1972)

(34) E. KNELLER, "Ferromagnetismus", S. 616 f., Springer-Verlag (1962)

(35) H. KRONMÜLLER, "Nachwirkung in Ferromagnetika", Springer-Verlag, Berlin (1968)

(36) R. FELDKELLER, "Spulen und Übertrager", Stuttgart, S. Hirzel (1958)

(37) C. KITTEL, J. Phys. Rad. 12, 291 (1951)

(38) L. NÉEL, J. Phys. Rad. 11, 309 (1949)

(39) N. STEIGENBERGER, K. STIERSTADT, s. ((33))

(40) D. STOLL, Zeitschr. f. angew. Phys. 19, Bd. 4, 334, Heft (1965)

(41) K. STIERSTADT, Z. Physik 229, 97 (1969)

(42) R. FELDKELLER, G. SORGER, Zeitschr. f. angew. Phys. 6, 390 (1954)

(43) R. FELDKELLER, O, KOLB, Zeitschr. f. angew. Phys. 4, 448 (1952)

Meinem verehrten Lehrer, Herrn Professor Dr. K. Stierstadt, danke ich für die Anregung der Arbeit und für sein förderndes Interesse.

Zu großem Dank verpflichtet bin ich auch Herrn Professor Dr. A. Faessler und Herrn Professor Dr. W. Rollwagen für die Überlassung eines Arbeitsplatzes und die Bereitstellung von Institutsmitteln.

Die Deutsche Forschungsgemeinschaft und das Bundesministerium für Bildung und Wissenschaft haben diese Arbeit durch finanzielle Zuwendungen unterstützt, wofür hiermit mein Dank ausgesprochen wird.

Lebenslauf

Am 10. August 1939 wurde ich als Sohn des Arztes Dr. med. Herbert Herzum und seiner Ehefrau Erika, geborene Hossner, geboren.

Nach der Ausweisung aus dem Sudetenland besuchte ich von 1946 bis 1949 die Volksschule in Sailauf bei Aschaffenburg und in Amorbach. Danach besuchte ich von 1949 bis 1955 die Oberrealschule in Amorbach, von 1955 bis zum Abitur im Sommer 1958 die Oberrealschule in Miltenberg.

Das Studium der Physik begann ich im Wintersemester 1958/59 an der Universität Würzburg. Ab Wintersemester 1959/60 führte ich mein Studium an der Universität München weiter. Die Diplomarbeit fertigte ich im I. Physikalischen Institut unter Anleitung von Herrn Prof. Dr. K. Stierstadt an und legte die Diplomhauptprüfung im Sommer 1966 ab. Seither arbeite ich an der hier vorliegenden Dissertation. Ab Wintersemester 1966/67 bin ich im physikalischen Anfängerpraktikum für Naturwissenschaftler als Assistent tätig.